Bestimmung des absoluten Wirkungsquerschnitts σ von alpha-aktiven Spallationsprodukten beim Beschuß von Thorium mit 600 MeV - Protonen

INAUGURAL - DISSERTATION
zur
Erlangung der Doktorwürde

eingereicht beim
Fachbereich Physikalische Chemie
der Philipps-Universität Marburg/Lahn

vorgelegt von

Dieter Molzahn
aus Burgstädt/S

Marburg/Lahn 1973

Druck: Görich & Weiershäuser, Marburg (Lahn)

Bestimmung des absoluten Wirkungsquerschnitts σ von alpha-aktiven Spallationsprodukten beim Beschuß von Thorium mit 600 MeV - Protonen

INAUGURAL - DISSERTATION
zur
Erlangung der Doktorwürde

eingereicht beim
Fachbereich Physikalische Chemie
der Philipps-Universität Marburg/Lahn

vorgelegt von

Dieter Molzahn
aus Burgstädt/S

Marburg/Lahn 1973

Druck: Görich & Weiershäuser, Marburg (Lahn)

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Vom Fachbereich Physikalische Chemie der Philipps-Universität Marburg/L. als Dissertation angenommen am 5. 12. 1973.

Tag der mündlichen Prüfung : 17. /19. 12. 1973

Berichterstatter : Prof. Dr. R. Brandt

Mitberichterstatter : Prof. Dr. P. Patzelt

Inhaltverzeichnis

1.	Einführung und Aufgabenstellung	1
1. 1.	Modellvorstellungen bei Hochenergie-Kernreaktionen	1
1. 2.	Überblick über bisher ausgeführte Rechnungen und Experimente	4
1. 3.	Aufgabenstellung dieser Arbeit	6
2.	Vorbereitung der Experimente	8
2. 1.	Die ISOLDE-Experimentiereinrichtung	8
2. 2.	Mechanischer Aufbau des Experiments im ISOLDE-Tunnel	10
2. 3.	Die Meßelektronik	18
2. 4.	Detektoren	21
2. 5.	Steuerprogramm des Analysators	30
2. 6.	Targets	33
2. 7.	Flußmessung	33
3.	Ausführung des Experiments und Diskussion der Ergebnisse	35
3. 1.	Auswahl der Targetmaterialien	35
3. 1. 1.	Bestrahlungen von Blei-Targets	35
3. 1. 2.	Bestrahlungen von Wismut-Targets	37
3. 1. 3.	Bestrahlungen von Uran-Targets	38
3. 1. 4.	Bestrahlungen von Thorium-Targets	38
3. 2.	Alpha-Spektren	41
3. 2. 1.	Alpha-Spektren der Kurzzeitbestrahlungen	41
3. 2. 2.	Alpha-Spektren der Langzeitbestrahlungen	45
3. 3.	Identifizierung der Nuklide durch Alpha-Energie und Halbwertzeit	45
3. 3. 1.	Die ^{227}Th-Reihe	54
3. 3. 2.	Die ^{226}Th/^{222}Ra-Reihe	57
3. 3. 3.	Die ^{225}Th/^{221}Ra-Reihe	60
3. 3. 4.	Die ^{226}Ac-Reihe	63
3. 3. 5.	Die ^{225}Ac-Reihe	64

3.3.6.	Die ^{223}Ac-Reihe	66
3.3.7.	Die ^{222m}Ac-Reihe	69
3.3.8.	Die ^{224}Ra-Reihe	77
3.3.9.	Die ^{211}Rn-Reihe	78
3.4.	Zusammenfassung	81
4.	Bestimmung der Wirkungsquerschnitte	83
4.1.	Mathematische Herleitung der Formel für die Berechnung von σ aus den Meßwerten	83
4.2.	Ergebnisse der Einzelbestrahlungen und Fehlerbetrachtung	86
4.3.	Diskussion der Ergebnisse	88
5.	Zusammenfassung	91
6.	Danksagungen	93
7.	Literaturverzeichnis	94

1. Einführung und Aufgabenstellung

1.1. Modellvorstellungen bei Hochenergie-Kernreaktionen

Eine Kernreaktion wird ganz allgemein durch die Gleichung

$$A + x \longrightarrow B + \sum_{i=1}^{n} y_i + \Delta E \qquad (1)$$

beschrieben. Dabei ist A das Targetnuklid, welches mit einem Teilchenstrahl x beschossen wird. B ist das bei der Reaktion neben einer Anzahl von n kleinen Teilchen y_i (z. B. Neutronen n , Protonen p usw.) entstehende Nuklid. Bei exothermen Reaktionen wird die Energie ΔE frei. Als Geschosse x werden Neutronen n , Protonen p , Deuteronen d , Alpha-Teilchen α oder schwerere Ionen verwendet. Bei einer derartigen Reaktion gelten Erhaltungssätze für Energie bzw. Masse, Barionenzahl , Impuls , Drehimpuls und Parität.

Ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, daß die Reaktion erfolgt, ist der Wirkungsquerschnitt σ , der durch die Gleichung

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A \qquad (2)$$

definiert wird. Φ ist die Flußdichte der Geschosse x in Teilchen /sec · cm^2, N_A bzw. N_B die Zahl der Atome des Nuklids A bzw. B . Die Dimension des Wirkungsquerschnitts ist cm^2. Bei Kenntnis des Wirkungsquerschnitts läßt sich die Produktionsrate eines bestimmten Nuklids B vorausberechnen.

Benutzt man als Geschosse geladene Teilchen, so müssen diese im Gegensatz zu Neutronen eine Mindestenergie E besitzen, damit sie die Coulomb-Abstoßung U des Kerns überwinden können. Es muß also die Beziehung gelten $E \geq U$. Die Potentialschwelle ist abhängig von der Ladung :

$$U \approx \frac{Z_A \cdot Z_x}{A_A^{1/3} + A_x^{1/3}} \quad \text{MeV} \qquad (3)$$

wobei Z die Ordnungszahl , A die Massenzahl der beteiligten Teilchen bedeuten. Beispielsweise muß nach Gleichung (3) bei der Reaktion zwischen einem Proton und einem Urankern das Proton eine Energie von etwa 13 MeV besitzen, um den Coulombwall U durchdringen zu können (vergl. [1]). Auch bei Energiewerten $E \leq U$ sind Reaktionen durch Tunneleffekt möglich, der Wirkungsquerschnitt dafür ist aber sehr klein.

In Abhängigkeit von der Energie E des Geschosses lassen sich die auftretenden Reaktionen grob in drei Gruppen unterteilen. Es sind

1. Energiebereich $10 \leq E \leq 100$ MeV
   Reaktionen mit Bildung und Zerfall eines Zwischenkerns (Compoundkern C).
2. Energiebereich $100 \leq E \leq 1000$ MeV
   Spallationsreaktionen
3. Energiebereich $E > 1$ GeV
   Fragmentierungs- und Spallationsreaktionen.

Einen Überblick über die Niederenergiereaktionen $10 \leq E \leq 100$ MeV gibt Porile[2]. Entsprechend einem von Bohr entwickelten Modell verschmelzen beim Beschuß mit niederenergetischen Projektilen Target und Geschoß zu einem Zwischenkern oder Compoundkern C , dessen Lebensdauer etwa 10^{-15} bis 10^{-14} sec beträgt. Diese Zeit ist groß gegenüber der Umlaufszeit eines Nukleons im Kern (etwa 10^{-21} sec). Die Energie des Projektils kann sich innerhalb der Lebenszeit des Zwischenkerns gleichmäßig auf alle Nukleonen verteilen. Der angeregte Zwischenkern zerfällt , wenn soviel Energie auf ein Nukleon oder eine Gruppe von Nukleonen konzentriert ist , daß eine Emission dieser Teilchen möglich ist. Diese Art der Reaktion wird beschrieben durch

$$A + x \longrightarrow (C) \longrightarrow B + y \qquad (4)$$

Beim Beschuß mit Protonen zwischen 20 und 50 MeV kommt es bevorzugt zu Reaktionen mit y = n , 2 n , np , 2 p , α . Ist aber $A \geq 232$, so wird die Kernspaltung bevorzugte Zerfallsart.

Hochenergie-Kernreaktionen mit $100 \leq E \leq 1000$ MeV werden von Hudis[3] ausführlich beschrieben. Die vorherrschende Reaktionsart des Targetkerns mit dem Projektil ist hier die Spallation, dh. die vom Kern aufgenommene hohe Anregungsenergie wird durch das Verdampfen mehrerer Nukleonen , bevorzugt Neutronen , abgegeben. Das Bohr'-sche Modell reicht zur Beschreibung dieser Reaktionen nicht mehr aus, an seine Stelle tritt das Serber - Modell[3),4)]. Danach verläuft die Reaktion in zwei Phasen . Die erste Phase wird schnelle Kaskade genannt. Das hochenergetische Projektil überträgt dabei zunächst in aufeinander folgenden Zusammenstößen mit Nukleonen des Kerns eines Teil seiner Energie auf diese Nukleonen, um dann mit verminderter Energie den Kern wieder zu verlassen. Die getroffenen Nukleonen haben eine derart hohe Energie aufgenommen, daß sie entweder selbst den Kern verlassen oder ihrerseits an andere Nukleonen Energie übertragen können. Der Kern reagiert nicht mehr als Einheit, sondern als Vielzahl einzelner Nukleonen. Es kommt also zu einer Kaskade derartiger Reaktionen, deren Ablauf in etwa 10^{-22} bis 10^{-21} sec erfolgt. Der am Ende der Kaskade verbleibende Restkern befindet sich in angeregtem Zustand. In der nun folgenden zweiten Phase , die bis zu 10^{-14} sec dauert und langsame Verdampfung (Evaporation) genannt wird , gibt der angeregte Kern seine überschüssige Energie entweder durch Verdampfen von Nukleonen und Kernbruchstücken oder durch Spaltung ab.

Auf die Hochenergie-Kernreaktionen über 1 GeV Teilchenenergie soll hier wegen ihrer Komplexität nicht eingegangen werden. Die vorherrschende Reaktionsart ist neben der Spallation die schnelle Kernspaltung (Fragmentierung). Neu bei dieser Kernreaktion ist vor allem, daß alle möglichen Kernbruchstücke zwischen Targetkern und einzelnen Protonen und Neutronen tatsächlich gebildet werden.

Zur Veranschaulichung dieser Vorgänge sind in Abb. 1 nach Miller und Hudis[5] die Massenausbeutekurven für den Beschuß von Wismut mit Protonen verschiedener Energie aufgetragen. Bei 40 MeV Protonenenergie

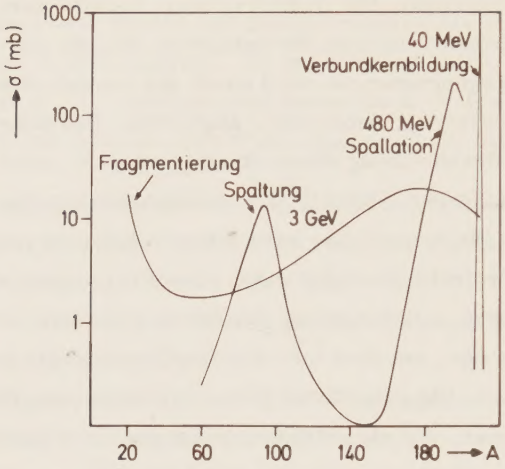


Abb. 1 Massenausbeutekurven von Wismut beim Beschuß mit Protonen verschiedener Energie (nach Miller und Hudis[5]).

findet man eine sehr scharfe Verteilung der Reaktionsprodukte in der Nähe der Masse des Targetkerns. Bei 480 MeV Protonenenergie sind zwei Gruppen von Reaktionsprodukten erkennbar. Im Bereich der Massen 160 bis 209 liegen die Endprodukte der oben beschriebenen Spallationsreaktionen und , deutlich davon getrennt , im Bereich von 60 bis 140 die Spaltprodukte. Bei 3 GeV Protonenenergie werden praktisch alle möglichen Bruchstücksmassen mit $0 < A < 210$ gebildet , unter ihnen befinden sich im Bereich $20 < A < 40$ die Fragmentierungsprodukte.

1. 2. Überblick über bisher ausgeführte Rechnungen und Experimente

Zur Berechnung von Spallationsreaktionen wurden auf der Grundlage des Serber-Modells Programme für Großrechenanlagen entwickelt , z. B. von Metropolis et al.[6),7)], Dostrovsky, Fraenkel und Rabinowitz[8)] sowie Hahn und Bertini[9)]. Bei diesen Programmen wird als mathematische

Methode die Monte-Carlo-Zufallsrechnung verwendet. Hudis[3] gibt einen ausführlichen Überblick über die anhand dieser Programme angestellten Rechnungen. Außerdem gibt Rudstam[10] eine halbempirische Formel zur Berechnung von Spallationsreaktionen an. Ein von Fraenkel[8] entwickeltes Computerprogramm wird nach Einführung einiger Erweiterungen bzw. Änderungen von Stark und Brandt[11] in Marburg benutzt , um die Ausbeute an Spallationsprodukten zu berechnen.

Eine wesentliche Voraussetzung zum Test dieser Reaktionsmodelle ist die Kenntnis der Wirkungsquerschnitte für Hochenergie-Kernreaktionen. Hierbei ist es sinnvoll, sich auf Reaktionen mit Protonen von etwa 600 MeV zu konzentrieren, da hier einmal vom Reaktionstyp her eindeutig mit Spallationsreaktionen gerechnet werden kann und es zum anderen zahlreiche Untersuchungen gibt. So existiert eine Reihe von Arbeiten, die relative Isotopenausbeuteverteilungen angeben, z. B. von Patzelt[12] oder Hagebø et al.[13]. Bei diesen Autoren liegt das primäre Interesse bei der Herstellungsmöglichkeit von Nukliden zum Zwecke der Kernspektroskopie und nicht bei der Bestimmung von Wirkungsquerschnitten. Es ist jedoch möglich, durch Bestimmung des Wirkungsquerschnitts eines einzigen Nuklids der Ausbeuteverteilung die Ausbeuten aller anderen Nuklide auf absolute Wirkungsquerschnitte zu normieren. Ein derartiger Versuch ist von Esterlund et al.[14] unternommen worden.

Absolut bestimmt wurden die Wirkungsquerschnitte von einigen Rb-, Sr-, Y- und Zr-Nukliden aus der Bestrahlung von U - , Pb- und Ta- Targets mit 580 MeV - Protonen durch Trabitzsch und Bächmann[15]. Eine Übersicht über weitere Bestimmungen von Wirkungsquerschnitten für Spaltprodukte gibt Brandt[16].

Es gibt vergleichsweise wenige Untersuchungen über Ausbeuten von Spallationsprodukten bei schweren Targets wie Th oder U , obwohl gerade diese sehr instruktiv sind, denn es läßt sich hier der Einfluß der Kernspaltung auf Spallationsausbeuten untersuchen. Die einzige größere Arbeit auf dem Gebiet der alpha-aktiven Spallationsprodukte ist die von Pate und

Poskanzer[17] aus dem Jahre 1960. Diese Autoren bestimmten die absoluten Wirkungsquerschnitte einiger Np- , U- , Pa- , Th- und Ac-Nuklide mit Halbwertzeiten größer als 8 min , die bei Bestrahlung von U- bzw. Th-Targets mit Protonen von Energien zwischen 680 MeV und 6.2 GeV entstehen. Ein Vergleich der experimentellen Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit mit berechneten Werten nach der Monte-Carlo-Methode ergibt jedoch, daß dieses Modell den Ablauf der Kernreaktion noch nicht befriedigend beschreibt. Die experimentell bestimmten Werte liegen um etwa eine Größenordnung über den rechnerisch ermittelten Werten.

1.3. Aufgabenstellung dieser Arbeit

Der wesentliche Gesichtspunkt, unter dem die hier vorliegende Arbeit steht , ist die Ausdehnung der Experimente von Pate und Poskanzer[17] in den Bereich kurzlebiger Nuklide. Da diese Autoren ihre Wirkungsquerschnitte mit Hilfe konventioneller naß-chemischer Trennverfahren bestimmten, konnten sie Ausbeuten nur für Nuklide ermitteln , die eine längere Halbwertzeit als etwa 8 min haben. Es fehlen also die zur Überprüfung der Kernmodelle notwendigen Daten für kurzlebigere Nuklide. Deshalb soll hier eine ON-LINE-Methode entwickelt werden, mit der alpha-aktive Nuklide bis herab in den Sekundenbereich ohne Benutzung chemischer Trennverfahren erfaßt werden können. Mit dieser Technik sollen die durch die Reaktion schwerer Targetelemente mit 600 MeV Protonen erzeugten Nuklide durch ihre Alpha-Energie und Halbwertzeit identifiziert werden. Der Wirkungsquerschnitt kann dann unmittelbar bestimmt und anschließend mit den Literaturwerten von Pate und Poskanzer[17] sowie den von Stark[20] nach der Monte-Carlo-Methode ermittelten Werten verglichen werden.

Mit dieser neuen Technik soll auch nach bisher unbekannten Nukliden gesucht werden, wie es in ähnlicher Weise schon von Hahn et al.[18),19)] beschrieben wurde. Schließlich kann noch versucht werden, eine vorhandene Isotopenverteilung zu normieren.

Zusammengefaßt ergibt sich also folgende Aufgabenstellung :

1. Entwicklung einer ON-LINE-Technik zur Messung der Alpha-Aktivität von kurzlebigen Nukliden ($\tau_{1/2} \geq 4$ sec), die durch Spallation beim Beschuß von Targets hoher Massenzahl mit Protonen hoher Energie entstehen.
2. Bestimmung der Wirkungsquerschnitte der erzeugten Nuklide.
3. Vergleich der gefundenen Werte mit anderen Experimenten sowie den Ergebnissen der Monte-Carlo-Rechnungen von Stark[20].
4. Suche nach bisher nicht bekannten Nukliden.
5. Normierung der Isotopenausbeutekurve des Radons.

2. Vorbereitung der Experimente

Zur Lösung der gestellten Aufgaben müssen die vorhandenen experimentellen Möglichkeiten untersucht werden . Dabei ist zu klären

wo die Experimente ausgeführt werden können

wie der mechanische Aufbau aussehen muß und

welche elektronische Meßapparatur notwendig ist .

Weiterhin muß vor der Ausführung der Experimente die gesamte Apparatur auf Zuverlässigkeit überprüft werden .

Die folgenden Abschnitte behandeln die vorbereitenden Versuche .

2. 1. Die ISOLDE - Experimentiereinrichtung

In einer schon früher beschriebenen Arbeit von Boos et al. [21), 22)] wurde am extrahierten Protonenstrahl des CERN - Synchrozyklotrons (ISOLDE - Strahl des SC) die Suche nach kurzlebigen spontanspaltenden Nukliden ausgeführt . Der dort benutzte mechanische Aufbau kann ohne wesentliche Veränderungen auch bei den hier geplanten Experimenten verwendet werden . Die Abb. 2 (nach Kjelberg et al. [23)]) vermittelt einen Eindruck der Gesamtanlage beim CERN . Vom Zyklotron her gelangen mit einer Frequenz von 54 Hz Protonen , die auf eine Energie von 600 MeV beschleunigt worden sind , durch das Strahlrohr in den ISOLDE - Tunnel und auf das ISOLDE - Target . Das Target ist über die Ionenquelle und das Ionen - Fokussierungs - system verbunden mit einem Isotopenseparator , in dem die im Target entstandenen Radioisotope getrennt werden können . Der Protonen - strahl hat eine Intensität von 1 bis $4 \cdot 10^{11}$ Protonen / sec . Im ISOLDE - Tunnel befindet sich zwischen zwei Quadrupolmagneten ein Fokussierungspunkt des Protonenstrahls . An dieser Stelle ist der mechanische Teil des zu beschreibenden Experiments aufgebaut worden . Hier werden die Kurzzeitbestrahlungen bis zu 10 min Bestrahlungszeit ausgeführt . Dabei wird parasitär zu den ISOLDE -

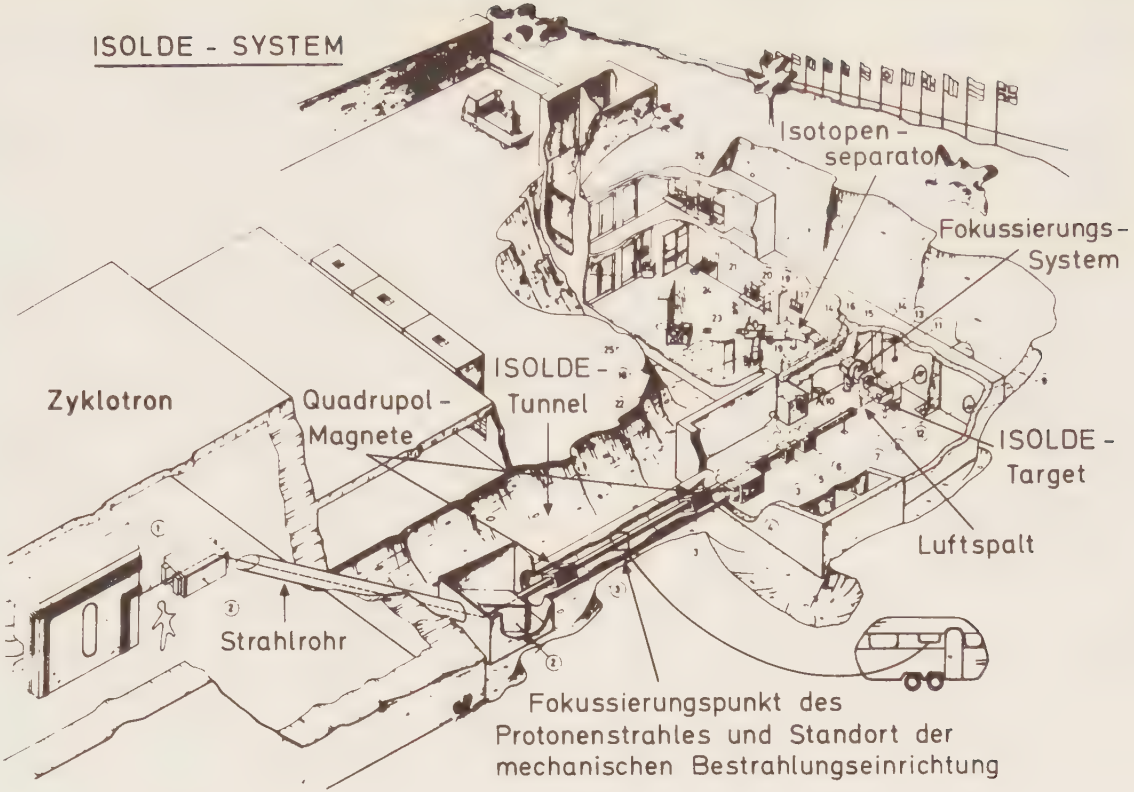


Abb. 2 Die ISOLDE - Anlage . Die Zahlen im Bild sind für diese Arbeit unwesentlich, Erläuterung bei Zitat 23).

Experimenten gearbeitet . Langzeitbestrahlungen (2 bis 30 h) können im Luftspalt zwischen Strahlrohr und ISOLDE - Target ausgeführt und die dabei entstandenen Nuklide anschließend an einem anderen Ort analysiert werden . Eine Voraussetzung für die Benutzung der Strahlposition im Tunnel ist , daß das Hauptexperiment am ISOLDE - Target nicht beeinflußt wird . Messungen der ISOLDE - Arbeitsgruppe haben jedoch ergeben , daß durch die in dieser Arbeit benutzten Targets die Strahlintensität am ISOLDE - Target nicht beeinträchtigt wird .

In der Abb. 2 ist außerhalb der ISOLDE - Anlage ein Meßwagen eingezeichnet , von dem sämtliche im ISOLDE - Tunnel untergebrachten Geräte dieser Arbeit gesteuert werden müssen , da sich während der Bestrahlungen selbstverständlich niemand im Tunnel aufhalten darf .

In den nächsten beiden Abschnitten werden die benutzten Experimentiereinrichtungen näher beschrieben.

2. 2. Mechanischer Aufbau des Experiments im ISOLDE - Tunnel

Die Hauptforderung an den mechanischen Aufbau ist der möglichst schnelle Transport des Targets von der Bestrahlungsposition zur Meßposition . Dabei ist wesentlich , daß die geometrische Lage in beiden Positionen des Targets wohl definiert und reproduzierbar ist. Außerdem muß die Apparatur vakuumdicht sein und das Target möglichst erschütterungsfrei transportiert werden können. Abb. 3 zeigt die schon früher verwendete Apparatur (Boos et al.[21), 22)]) mit Abschirmung , anhand der Abb. 4 (Mechanik) und 5 (Steuerung) wird sie näher erklärt .

Ein Drehstrom - Bremsmotor (Abb. 4) mit Dauermagnetbremse (Georgii - Kobold) treibt eine Doppelkette K , an der das Target T mit einer Halterung befestigt ist . Zwei Lichtschranken L bewirken einen schnellen Stop des Targets in der Bestrahlungsposition (Pos. 1) bzw. Meßposition (Pos. 2) . Zur Reduzierung des Null-

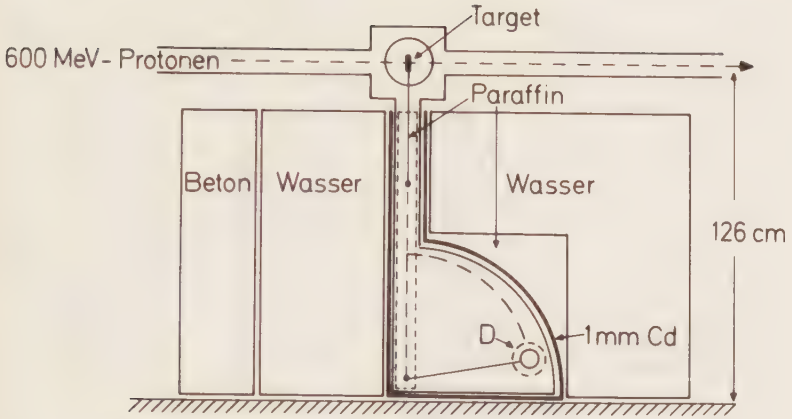


Abb. 3 Bestrahlungseinrichtung mit Abschirmung im ISOLDE - Tunnel . D Detektor in der Meßposition.

effekts liegt die Meßposition nicht senkrecht unter dem Strahlrohr, sondern ist im Winkel von 90^{o} um eine Targethalterlänge seitlich verschoben .

Die Motorsteuerung erfolgt über vier Relais Re (Abb. 5) . Re_1 ist geöffnet , Re_2 geschlossen , wenn sich das Target in Bestrahlungs - position befindet . Soll das Target bei Bestrahlungsende in die Meß - position gefahren werden , muß die Starttaste DT zur Überbrückung von Re_1 kurz geschlossen werden . Re_3 schließt nun , der Motor M beginnt zu laufen . Das Relais Re_1 schließt , wenn die Targethalterung den Lichtstrahl der oberen Lichtschranke in Abb. 4 verlassen hat . Durchfährt die Halterung des Targets die Lichtschranke bei Pos. 2 , öffnet Re_2 und damit auch Re_3 . Der Motor stoppt . Durch Betätigung des Schalters „Richtungsumkehr " wird nun das Relais Re_4 umge - polt , so daß das Target nach Beendigung des Meßvorgangs wieder in die Bestrahlungsposition fahren kann .

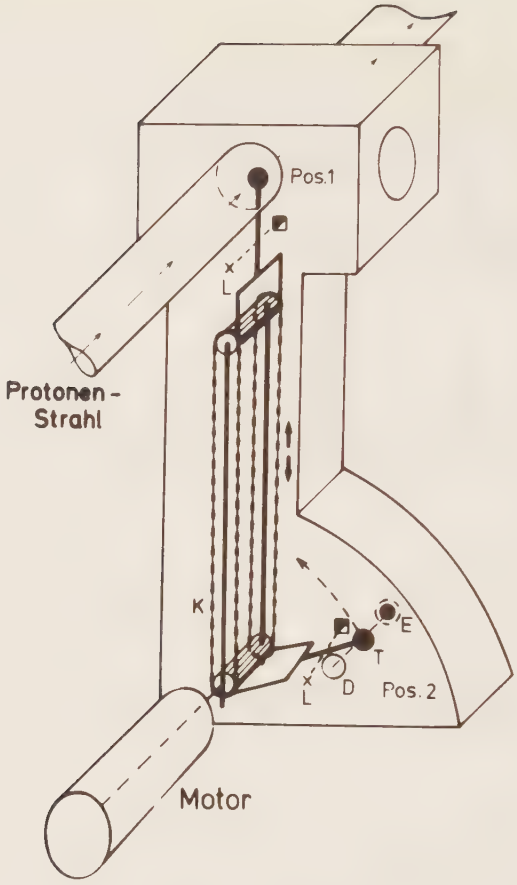


Abb. 4 Mechanik der Bestrahlungseinrichtung. Erläuterung im Text.

Zum Transport des Targets von einer Position in die andere benötigt diese Maschine 4 sec. Dieser Wert begrenzt nach unten die mit dieser Anordnung meßbaren Halbwertzeiten.

In der Meßposition Pos. 2 (Abb. 4) ist gegenüber dem Detektor D ein Eichstandard E (^{241}Am/^{244}Cm) angebracht, der es erlaubt, während

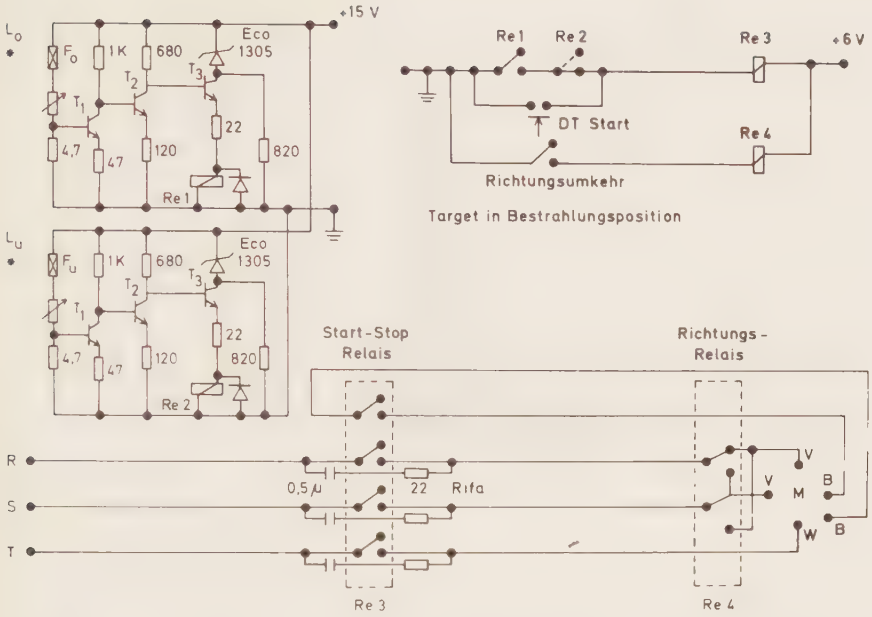


Abb. 5 Steuerung der Bestrahlungseinrichtung . Erläuterung im Text .

der Bestrahlungszeit den Detektor und die Elektronik zu überwachen. Ist das Target in der Meßposition , wird die Eichquelle durch das Target verdeckt .

Zur Untersuchung der Reproduzierbarkeit der geometrischen Lage des Systems ist die Targethalterung 75 mal in die Bestrahlungsposition Pos. 1 gefahren und dort mit einer Millimeterteilung die Abweichung in mm vom Sollwert der Stopstellung festgestellt worden. Das Resultat ist in Abb. 6 aufgetragen . Negative Abweichungen bedeuten einen zu frühen Stop , positive ein Überfahren der gewünschten Halteposition. Aus mechanischen Gründen ist ein weiteres Überfahren der Sollstellung nicht möglich .

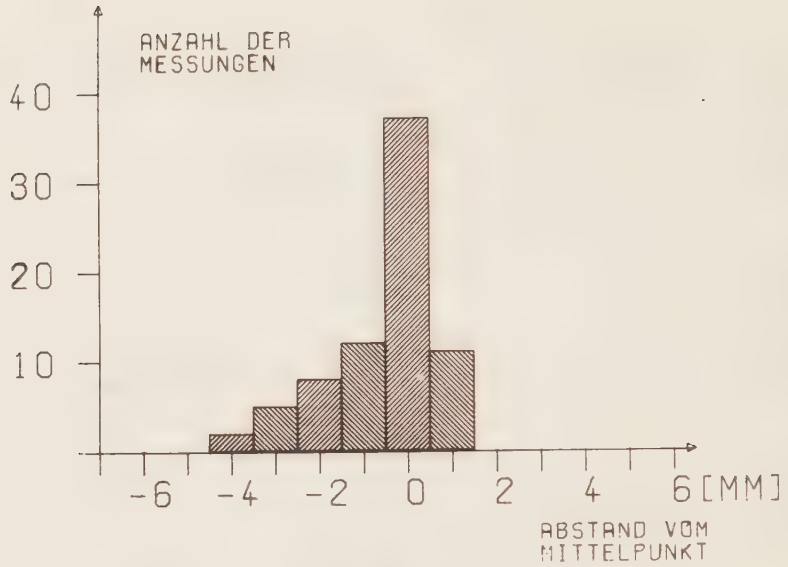


Abb. 6 Untersuchung der Reproduzierbarkeit der Bestrahlungsposition der Bestrahlungseinrichtung.

Die Reproduzierbarkeit der geometrischen Lage der Meßposition Pos. 2 ist durch die Ermittlung der Zählrate eines ^{244}Cm - Standards anstelle des Targets getestet worden. Dazu wurde der Standard 120 mal in die Position 2 gefahren. Das Ergebnis dieser Messungen ist in Abb. 7 auf Wahrscheinlichkeitspapier aufgetragen. $\overline{m}$ ist der arithmetische Mittelwert der Zählrate aus 120 Messungen unterschiedlicher Meßzeit. Die aus dem arithmetischen Mittelwert errechnete theoretische Gerade ist in die Abb. 7 eingezeichnet. Da die Abweichungen der experimentell ermittelten Werte von den theoretischen bei $\overline{m} - 2\sigma$ und $\overline{m} + 2\sigma$ nicht mehr als 1.2 % betragen, kann nach Herforth - Koch[24] die Messung als statistisch rein bezeichnet werden.

In diesem Zusammenhang sei noch auf zwei Punkte hingewiesen, durch die eine Verfälschung des Resultats infolge Abweichungen der Target-

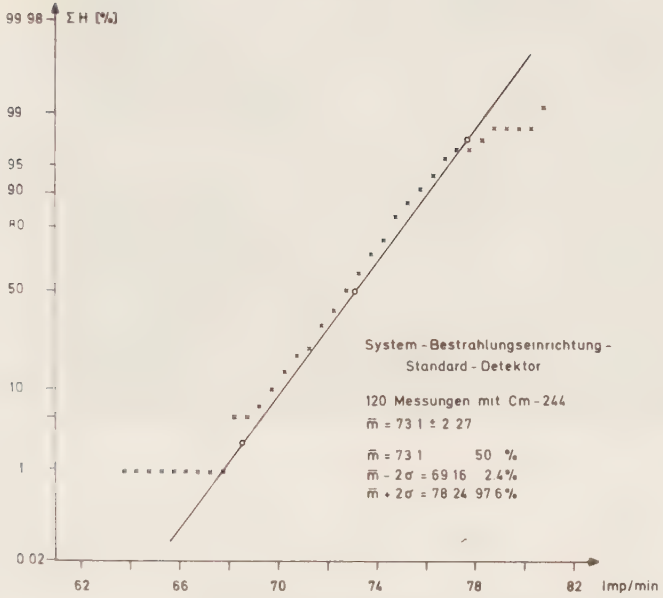


Abb. 7 Untersuchung der Reproduzierbarkeit der Meßposition der Bestrahlungseinrichtung.

lage vom Sollwert reduziert wird. 1. Der Protonenfluß wird mit einem Aluminium-Monitor bestimmt, der direkt am Target befestigt ist. Dh. das Target ist dem gleichen Protonenbeschuß ausgesetzt wie die Monitorfolie. 2. Wie in Abschnitt 2.4. näher beschrieben wird, ist der Abstand Target-Detektor in Pos. 2 sehr groß. Abweichungen der Targetlage vom Sollwert, die klein sind gegenüber dem Abstand Target-Detektor spielen deshalb keine Rolle.

Aus Abb. 3 ist zu ersehen, daß zur Reduzierung des Nulleffekts die gesamte Transporteinrichtung mit einer Reihe von Abschirmmaterialien umgeben ist. Die Detektoranordnung wird zunächst von einem 1 mm dicken Cd-Blech eingehüllt. Daran schließen sich mehrere Lagen Bor-

Paraffin- und Holzblöcke an. Schließlich wird alles von mehreren Schichten mit Wasser gefüllter Behälter umgeben und in Strahlrichtung noch durch 60 cm Schwerbeton abgeschirmt. Auf die Nulleffektmessungen wird in Abschnitt 2. 3. noch näher eingegangen.

Um die Targetposition auf den Fokussierungspunkt des Protonenstrahls einjustieren zu können, ist eine Al-Folie während eines Bestrahlungstages in die Targetebene gesetzt und über die Reaktion ^{27}Al (p, 3pn)^{24}Na die genaue Lage des Strahls ermittelt worden. Dazu wurde entsprechend Abb. 8 die Aluminium-Folie in 1 cm^2 große Stücke zerschnitten und deren Gamma-Aktivität aus dem Zerfall des 15 h ^{24}Na gemessen. In Abb. 8 sind die relativen Intensitäten der ^{24}Na - Aktivität angegeben. Aus dieser Messung ergibt sich, daß die Hauptintensität des Protonenstrahls durch etwa 6 cm^2 Fläche geht, während die Fläche der benutzten Targets etwa 9 cm^2 beträgt. Zusätzlich kann die Bestrahlungsposition überprüft werden durch Einbau eines ZnS-Schirms auf der Rückseite des Targets und Beobachtung der durch den Protonenstrahl auf dem Schirm erzeugten Fluoreszenz mit einer Fernsehkamera.

Einen Eindruck von den experimentellen Aufbauten im ISOLDE-Tunnel vermitteln die Abb. 9 und 10.

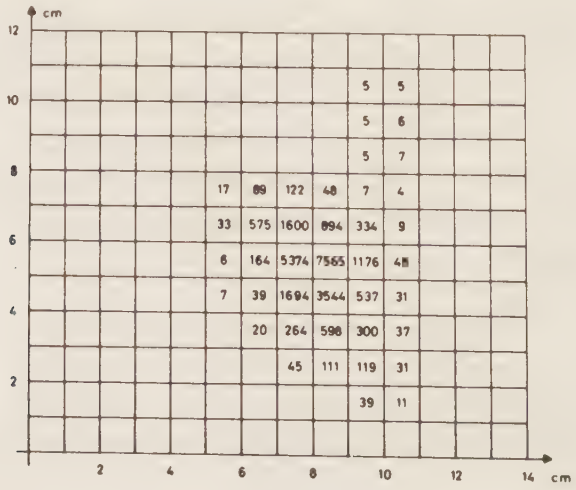


Abb. 8 Ermittlung des Fokussierungspunktes des Protonenstrahls unter Ausnutzung der Reaktion ^{27}Al (p, 3pn)^{24}Na.

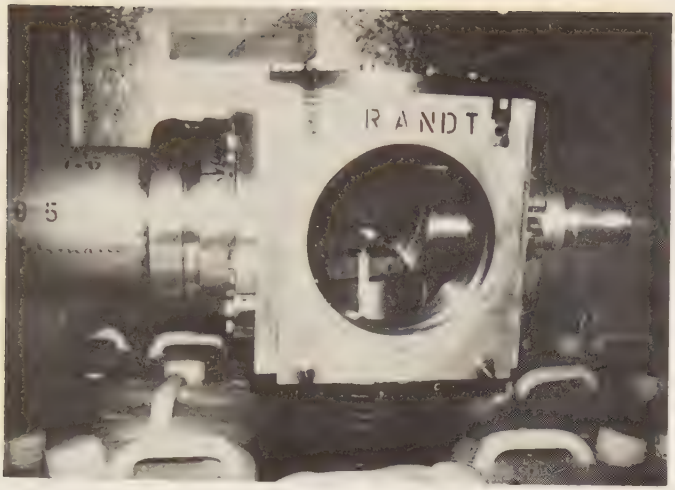


Abb. 9 Strahlrohr und Kopf der Bestrahlungseinrichtung im ISOLDE - Tunnel.

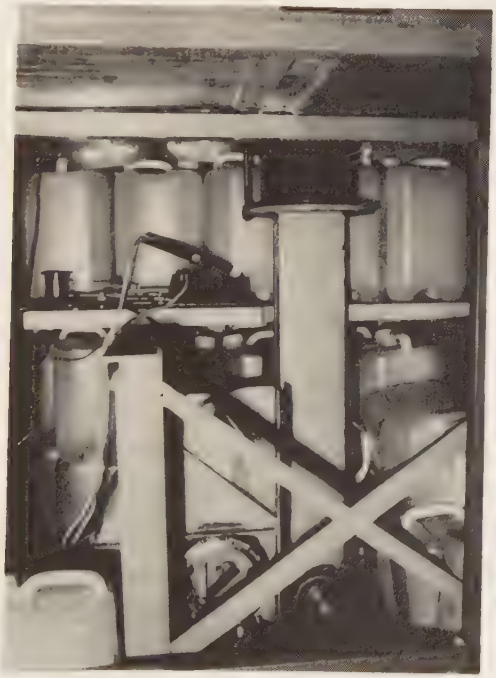


Abb. 10 Bestrahlungseinrichtung im ISOLDE - Tunnel.

2. 3. Die Meßelektronik

Wie schon erwähnt , ist der ISOLDE - Tunnel während der Bestrahlungen wegen der hohen Strahlendosis nicht zugänglich . Daher muß die gesamte Meßapparatur mit Ausnahme des Detektors nebst Vorverstärker und Spannungsversorgung außerhalb des Tunnels untergebracht werden . Zu diesem Zweck steht auf dem Hof der SC - Anlage ein Wohnwagen zur Verfügung , der mit der Apparatur im ISOLDE - Tunnel durch eine Reihe von Kabeln verbunden ist .

Das Blockschaltbild der verwendeten elektronischen Meßanordnung ist in Abb. 11 dargestellt .

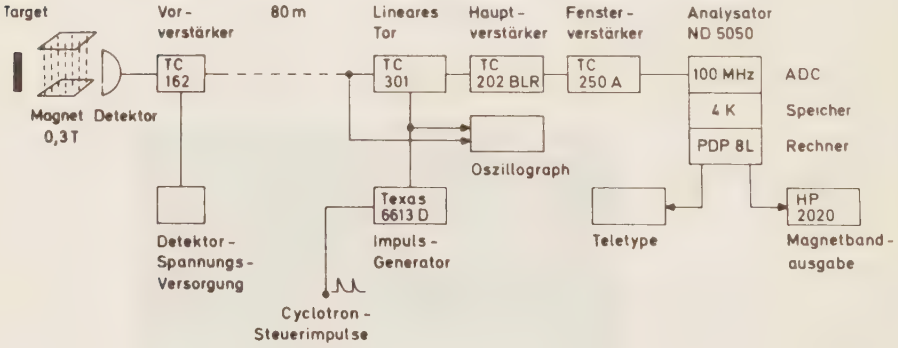


Abb. 11 Blockschaltbild der elektronischen Meßapparatur .

Über das Detektorsystem einschließlich des Magneten wird in Abschnitt 2. 4. ausführlich berichtet . Hier sei nur erwähnt , daß die vom Target ausgehende Alpha - Strahlung im Detektor elektronische Impulse erzeugt , die einem Vorverstärker (Tennelec TC 133 bzw. TC 162) zugeführt werden . Dieser Vorverstärker arbeitet als Impedanzwandler , so daß die von ihm ausgehenden Impulse ohne Verluste über ein 80 m langes , doppelt abgeschirmtes 50 Ohm Kabel ein

lineares Tor (Tennelec TC 301) und zur Impulsformung und Verstärkung den Hauptverstärker (Tennelec TC 202 BLR bzw. TC 203 BLR) erreichen können . Die Ausgangsimpulse haben Gaußform , ihre Zeitkonstante liegt bei 1.6 bzw. 2 µsec . Im Fensterverstärker (Tennelec TC 250 AN) kann der interessierende Energiebereich ausgewählt und weiter verstärkt werden . Anschließend gelangen die Signale in den Analog - Digital - Wandler (Nuclear Data 100 MHz) des Vielkanalanalysatorsystems (Nuclear Data 50/50) . Der Analysator wird von einem Prozeßrechner (Digital PDP 8 L) gesteuert. Die Datenausgabe kann über eine Schreibmaschine mit Lochstreifenstanzer (Teletype) oder über ein Magnetbandgerät (Hewlett - Pakkard 2020) erfolgen . Das verwendete Steuerprogramm für den Analysator wird in Abschnitt 2. 5. beschrieben .

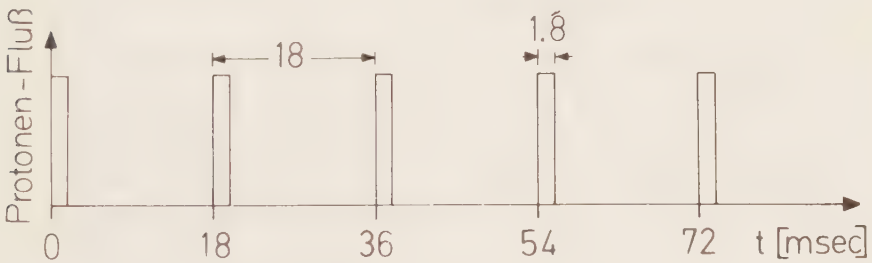


Abb. 12 Protonenfluß des SC - Strahls in Abhängigkeit von der Zeit .

Wie aus Abb. 12 hervorgeht , handelt es sich bei dem Protonenstrahl des SC (Synchrozyklotrons) um einen gepulsten Strahl von 54 Hz . Alle 18 msec erreicht der Protonenfluß ein Maximum , nach etwa 1 bis 1.8 msec Dauer ist er wieder auf Null abgesunken . Während des Protonenpulses werden nun im Strahlrohr prompte Neutronen erzeugt , die sich augenblicklich auf den gesamten Tunnel verteilen und Ursache eines stark erhöhten Nulleffekts im Detektor sind . Die Abb. 13 zeigt

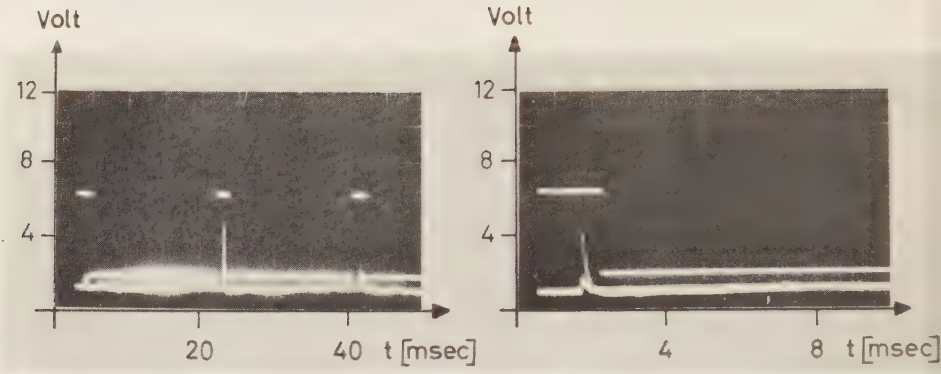


Abb. 13 a Abb. 13 b

Abb. 13 Detektorsignal bei Protonenmaximum sowie Torsignal. Einzelheiten im Text.

auf einem Polaroid - Foto das Verhalten des Detektors bei diesem Vorgang. In Abb. 13 a erkennt man drei aufeinander folgende Flußmaxima, die im Detektor erzeugten Impulse können dabei Teilchen mit Energien bis zu 100 MeV (das entspricht etwa 4 Volt Impulshöhe) vortäuschen. Da hierdurch der Nulleffekt für den ganzen interessierenden Meßbereich (etwa von 4 bis 12 MeV) sehr hoch wird, muß während der Zeitdauer des Protonenpulses die Meßapparatur geschlossen gehalten werden. Das wird erreicht durch einen vom SC kommenden Steuerimpuls, der das Ende eines jeden Protonenpulses anzeigt. Dieser Impuls wird nun verwendet zur externen Steuerung des Impulsgenerators (Texas - Instruments 6613 D) in Abb. 11. Der Impulsgenerator erzeugt mit einer Zeitverzögerung, die dem Abstand zweier Protonenflußmaxima entspricht, ein Signal, welches das lineare Tor zum Zeitpunkt des folgenden Protonenflußmaximums für 1,8 msec schließt. Aus den Abb. 13 a und 13 b ist die Lage des Schließimpulses (etwa 4,3 Volt Amplitude, 1,8 msec Dauer) über dem

Nulleffektimpuls zu erkennen . Dabei liegt auf dem Eingang 1 eines Oszillographen das Steuersignal , auf dem Eingang 2 das Ausgangs - signal des Vorverstärkers .

Abb. 14 zeigt über 140 min Meßzeit das Spektrum des Nulleffekts bei laufendem Strahl und eingeschalteter Torsteuerung . Es ist dabei der gleiche Energiebereich dargestellt wie bei den eigentlichen Messungen . Das Maximum des Nulleffekts liegt bei Energien , die für die Meßreihen verhältnismäßig uninteressant sind , da zur Bestimmung des Wirkungsquerschnitts fast ausschließlich die gut getrennten Alpha - Linien hoher Energie verwendet worden sind . Der Nulleffekt über den Gesamtbereich liegt bei der Messung der Abb. 14 bei 0.81 Imp/min .

Abb. 14 Spektrum des Nulleffekts .

2. 4. Detektoren

Die Forderung , die bei diesen Messungen an die Detektoren gestellt wird , ist neben guter Auflösung eine möglichst große aktive Fläche , da die zu erwartenden Aktivitäten klein sind . Zur Ver-

fügung stehen Detektoren der Firma Siemens vom Typ G 16 N , welche eine Auflösung von etwa 20 bis 27 keV Halbwertsbreite für die Alpha - Strahlung des Eichstandards ^{241}Am bei $E_{\alpha} = 5.49$ MeV haben bei einer aktiven Fläche von 300 mm^2 , sowie ein Detektor der Firma Ortec (Model A - 025). Dieser soll nach Angaben des Firmen - Datenblatts 19.4 keV Halbwertsbreite Auflösung und eine Fläche von 200 mm^2 besitzen.

In Abb. 15 , Kurve a , sind die mit einem Siemens - Detektor gemessenen Alpha - Spektren des ^{241}Am und des ^{244}Cm aufgetragen. Für beide Linien ist die gemessene Auflösung entsprechend dem Datenblatt etwa 27 keV Halbwertsbreite . Diese Messung ist bei Zimmertemperatur in einer Vakuum - Meßkammer (Druck kleiner als $5 \cdot 10^{-1}$ Torr) ausgeführt worden , die Meßzeit betrug 2,7 h . Bei längerer Meßzeit verschlechtert sich die Auflösung erheblich . Die Ursache dieser Drift muß entweder eine Detektoreigenschaft sein oder in der Temperaturabhängigkeit der Meßapparatur gesucht werden.

Ein entsprechender Versuch mit dem Ortec - Detektor zeigt , daß die Auflösung dieses Detektors über Stunden Meßzeit konstant bleibt , die auf dem Datenblatt angegebene Auflösung allerdings nicht erreicht werden kann (Abb. 16) . Das bedeutet , daß ein Einfluß der Meßapparatur auszuschließen ist .

Engelkemeir[25] hat berichtet , daß sich die Auflösung von Silizium - Oberflächen - Sperrschicht - Detektoren durch Kühlung verbessern läßt . Es ist deshalb eine Halterung gebaut worden , mit der der Detektor auf der kalten Seite eines Peltier - Elements (Valvo PT 20/20) befestigt werden kann . Das Peltier - Element wird bei 2 Volt Spannung mit einem Strom von 20 Ampere gespeist . Seine warme Seite wird mit einem Thermostaten gekühlt . Die am Detektor erreichte Temperatur beträgt - 20° C , sie wird mit einem Pt - Widerstand ständig kontrolliert .

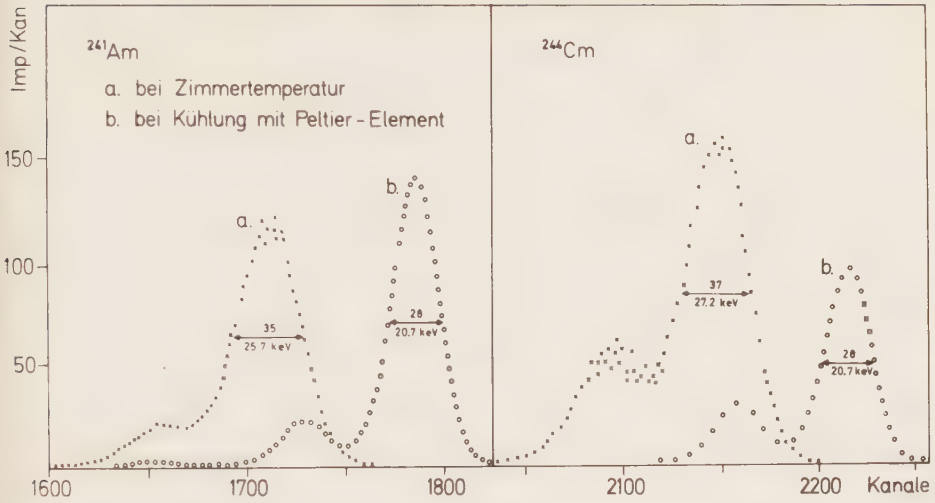


Abb. 15 Eichspektren, aufgenommen mit dem Siemens-Detektor 5. Die Halbwertsbreite in keV ist eingetragen.

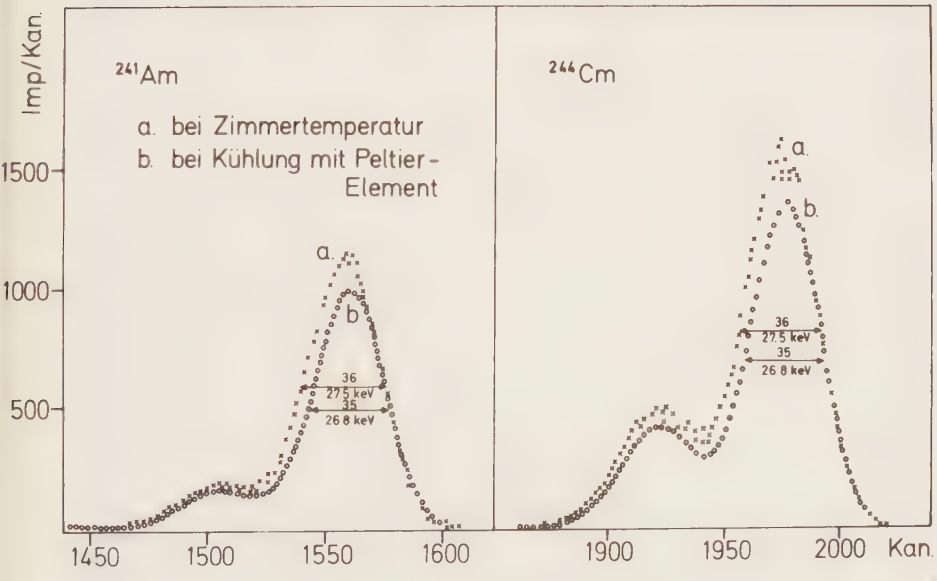


Abb. 16 Eichspektren, aufgenommen mit dem Ortec - Detektor. Die gemessene Auflösung in keV Halbwertsbreite ist eingetragen.

Detektor	Halbwertsbreite in keV			Kanalverschiebung	Detektor-Spannung	Vakuum in Torr	Meßzeit
	^{239}Pu	^{241}Am	^{244}Cm				
Siemens 1							
ungekühlt	36.9	34.4	34.4		21 Volt	0.5	57 min
gekühlt	24.6	24.6	24.6	29 Kan.	21 "	0.5	40 "
Siemens 2		20			15 "	10^{-2}	
ungekühlt	32.5	30	30		21 "	0.5	14.8 h
gekühlt	27	24.6	24.6	40 Kan.	21 "	0.5	80 min
Siemens 3		bei Messung durch Lufteinbruch zerstört					
Siemens 4		20			30 "	10^{-2}	
ungekühlt	32.5	29.5	31		21 "	0.5	14.5 h
gekühlt	27.6	24.7	24.7	20 Kan.	21 "	0.5	5 h
Siemens 5		27			20 "	10^{-2}	
ungekühlt	28	25.7	27.2		21 "	0.5	2.7 h
gekühlt	23.6	20.7	20.7	60 Kan.	21 "	0.5	12 h
Ortec		19.4			50 "		
ungekühlt	27.5	27.5	27.5		50 "	0.5	1.5 h
gekühlt	29	26.8	26.8	1 Kan.	50 "	0.5	10.4 h

Tabelle 1 Detektoreigenschaften. In der Zeile der Detektorbezeichnung sind die Daten des Herstellers eingetragen.

Es sind nun die Messungen mit dem Eichstandard am gekühlten Detektor wiederholt worden. Das Resultat ist den Kurven b in den Abb. 15 und 16 zu entnehmen, außerdem gibt Tabelle 1 einen Überblick über die Daten aller untersuchter Detektoren.

Der Ortec - Detektor reagiert praktisch überhaupt nicht auf die Kühlung. Auflösung und Lage der Peak - Maxima bleiben erhalten. Anders ist das Ergebnis bei den Siemens - Detektoren. Die Auflösung verbessert sich zum Teil wesentlich, auch bei sehr langen Meßzeiten ist keine Drift zu erkennen. Die Lage der Peak - Maxima verschiebt sich zu höheren Kanalwerten. Diese Verbesserung der Detektordaten ist auf eine Verringerung des Detektor - Leckstromes zurückzuführen.

Die Abb. 17 zeigt das Alpha - Spektrum von ^{241}Am in halblogarithmischer Darstellung, aufgenommen mit dem Detektor Siemens 5. Die Maxima der Peaks sind Angaben von Baranov et al.[26] entnommen.

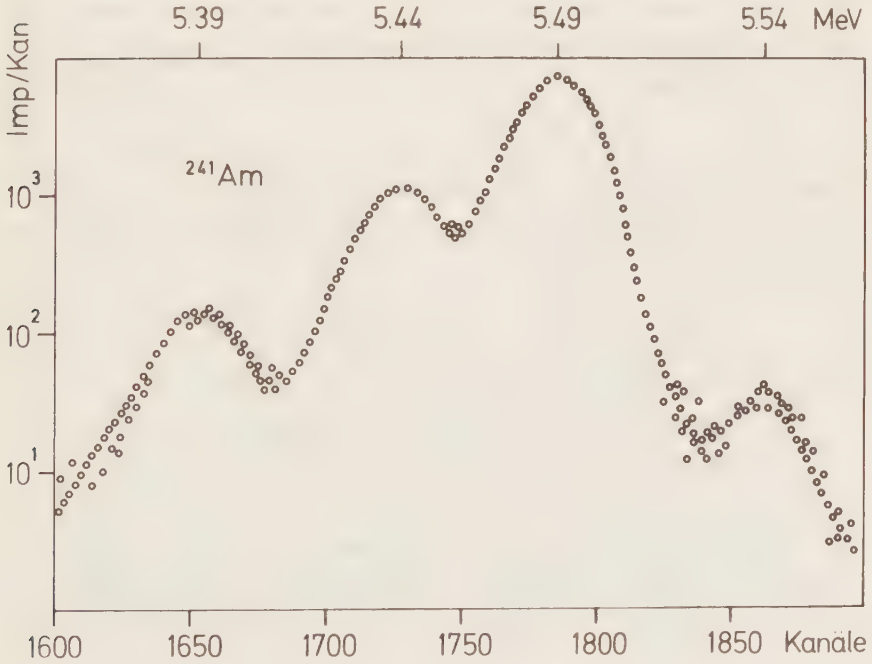


Abb. 17 Alpha-Spektrum von ^{241}Am, aufgenommen mit Detektor Siemens 5 in halblogarithmischer Darstellung.

Betrachtet man nun die Vor - und Nachteile der beiden Detektor - Typen , so spricht für den Ortec - Detektor seine Langzeitkonstanz bei Zimmertemperatur . Seine ganze Handhabung ist einfacher . Gegen ihn spricht die kleinere Zählfläche sowie die etwas schlechtere Auflösung . Da diese aber bei beiden Typen von gleicher Größenordnung ist , kann eine Entscheidung , welchem der Detektoren der Vorzug zu geben ist , nur von Zählfläche und Konstanz beeinflußt werden . Die Zählfläche ist eine sehr wichtige Größe , da , wie weiter unten näher beschrieben wird , der Abstand zwischen Target und Detektor durch Einbau eines Magneten übermäßig groß wird . Die endgültige Entscheidung ist im wesentlichen durch die Arbeits - methoden des Kontrollraums des SC in Genf getroffen worden : In der Regel muß sofort nach Beendigung eines Bestrahlungsruns die Vakuumanlage belüftet werden . Das bedeutet Zerstörung des gekühlten Detektors durch Kondensierung von Wasserdampf auf der Detektoroberfläche . Für alle Messungen im ISOLDE - Tunnel wird also der Ortec - Detektor verwendet , während für Langzeitmessungen in der separaten Meßkammer ein gekühlter Siemens - Detektor benutzt werden kann.

Die ersten Messungen im ISOLDE - Tunnel haben bei laufendem Strahl mit Target eine Auflösung von nur 60 keV Halbwertsbreite ergeben . Als mögliche Ursachen für diese Verschlechterung sind folgende Punkte untersucht worden :

a.) Einfluß von Störungen bedingt durch die lange Kabelleitung zwischen Vorverstärker und Hauptverstärker .

b.) Einfluß des Protonenstrahls auf den Detektor .

c.) Einfluß der Targetdicke auf die Auflösung .

d.) Linienverbreiterung durch hohe Beta - und Gamma - Aktivitäten .

Die unter Punkt a.) gegebene Möglichkeit kann nach einer Messung der Auflösung mit dem Eichstandard ohne Protonenstrahl schnell ausgeschlossen werden . Die Auflösung liegt für den Ortec - Detektor sowie verschiedene Siemens - Detektoren zwischen 27 und 30 keV Halb -

wertsbreite .

Zur Kontrolle von Punkt b.) ist während einer Bestrahlung der eingebaute Eichstandard ausgemessen worden . Beide Detektortypen zeigen nur geringfügige Abweichungen gegenüber den Ergebnissen des Punkts a.) , die hervorgerufen werden durch die Thyristor - Steuerung der Magneten im Tunnel . Abb. 18 zeigt das Ergebnis einer derartigen Messung . Die Halbwertsbreite für das ^{244}Cm bei laufendem Protonenstrahl liegt bei etwa 31 keV . Der ^{241}Am - Anteil des Standards ist sehr gering .

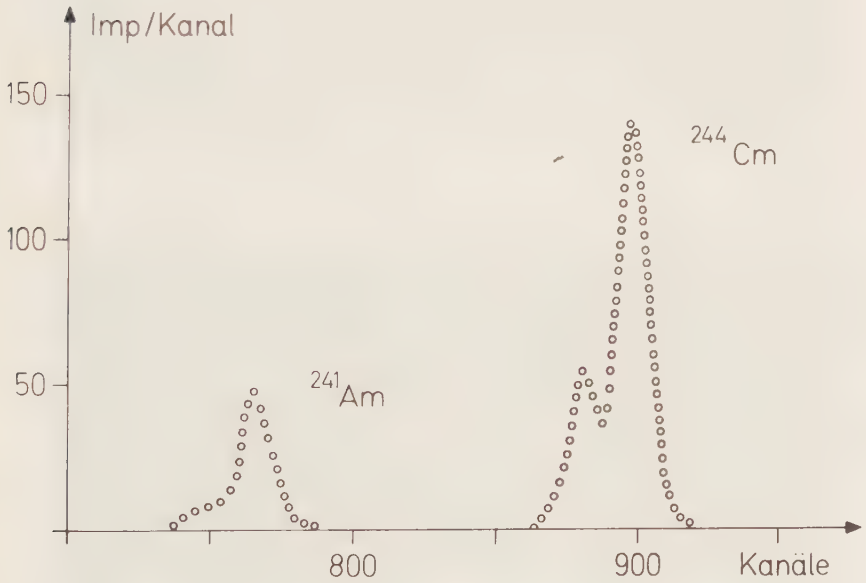


Abb. 18 Kontrollmessung der Auflösung eines Detektors während einer Bestrahlung .

Hahn et al. [19] bringen bei ihren Versuchen nicht das Target vor den Detektor , sondern arbeiten mit einer Rückstoß - Fänger - Technik . Dadurch soll eine möglichst dünne Quelle erzeugt werden , um Linien-

verbreiterung durch Selbstabsorption zu vermeiden . Zur Überprüfung von Punkt c.) ist deshalb während einer Bestrahlung das Target fest in den Strahl gesetzt und ein Fänger aus Aluminium - Folie anstelle des Targets abwechseln in Bestrahlungs- und Meßposition gefahren worden . Das Resultat dieser Messung war keine Verbesserung der Auflösung .

Es ist deshalb anzunehmen , daß die schlechte Auflösung durch die hohe Beta / Gamma - Aktivität des bestrahlten Targets bedingt wird . Insbesondere dürfte hier die bestrahlte Aluminium - Träger - Folie mit ihrer Aktivität stören . Prinzipiell lassen sich Beta - Teilchen eliminieren durch Einbau eines starken Magneten zwischen Target und Detektor . MacFarlane et al. [27] verwenden dazu einen Elektromagneten von 2.3 Tesla . Durch seine großen Abmessungen verringert ein derartiger Magnet den Öffnungswinkel des Detektors erheblich . Daher wird in dieser Arbeit ein bedeutend kleinerer Festmagnet von 0.3 Tesla benutzt . Eine weitere Verringerung des Einflusses von Beta- und Gammastrahlung läßt sich erreichen durch Verwendung eines Detektors

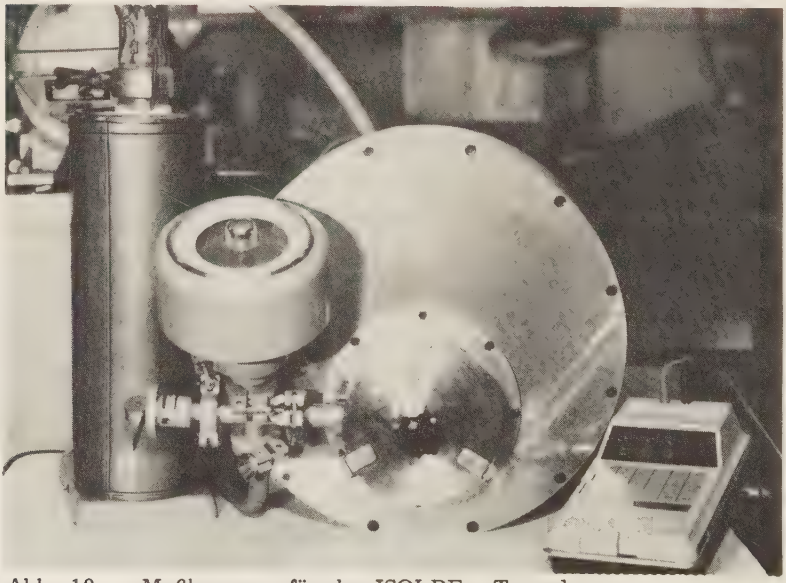


Abb. 19 Meßkammer für den ISOLDE - Tunnel .

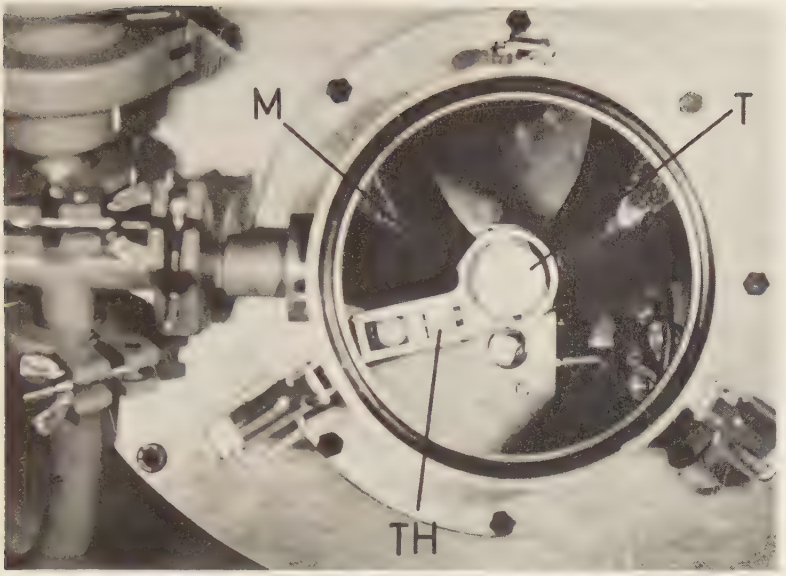


Abb. 20 Blick in die geöffnete Meßkammer. T Target, TH Targethalterung, M Magnet.

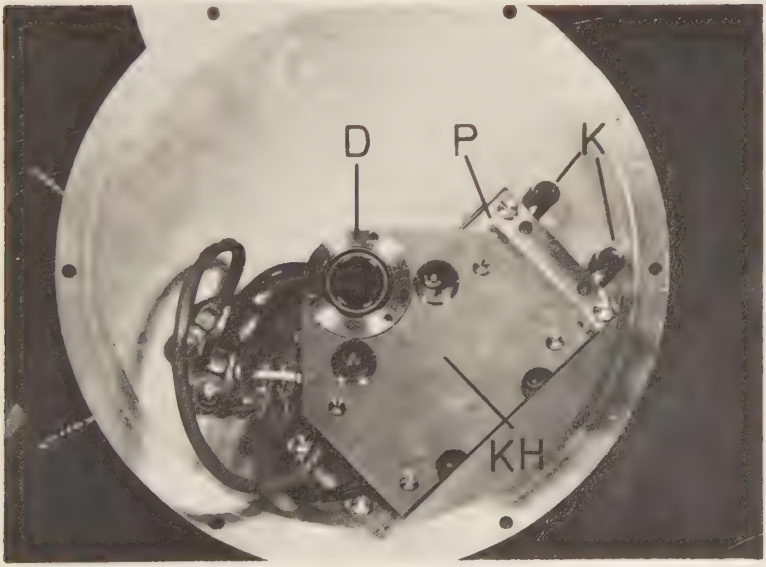


Abb. 21 Ansicht der Detektoranordnung. D Detektor, KH Kupferhalterung, P Peltier-Element, K Kühlanschluß.

von nur 100 µm empfindlicher Schichttiefe. Mit einer derartigen Anlage wird in den im folgenden zu beschreibenden Experimenten eine Auflösung von etwa 28 bis 35 keV Halbwertsbreite erzielt.

Abb. 19 zeigt die geschlossene Meßkammer, die sowohl an die Bestrahlungseinrichtung montiert als auch separat für Langzeitmessungen benutzt worden ist. In Abb. 20 erkennt man bei einem Blick in die geöffnete Meßkammer das Target T über den Polschuhen des Magneten M und in Abb. 21 den Detektor D, der durch die Kupferplatte KH mit dem Peltier-Element P verbunden ist.

2.5. Steuerprogramm des Analysators

Neben der Energie-Analyse des Spektrums interessiert auch dessen zeitliche Änderung. Ein übliches Verfahren in diesem Fall ist das Multi-Spectrum-Scaling. Dabei wird für eine vorgegebene Zeit z. B. die Alpha-Strahlung einer Quelle analysiert. Die gesammelten Daten werden sodann möglichst schnell ausgegeben, der Speicher gelöscht und der Analysator neu gestartet. Dieser Vorgang wird sehr oft wiederholt. Die Analysatorzeit muß zu Beginn der Messung als konstant festgelegt werden. Da aber die im Spektrum auftretenden Peaks sehr unterschiedliche Halbwertzeit besitzen können, erweist sich dieses Verfahren als nachteilig.

Deshalb ist für das hier zu lösende Problem gemeinsam mit der Firma Nuclear Data eine neue Art der Datenerfassung entwickelt worden. Für den rechnergesteuerten 4096-Kanal-Analysator 50/50 der Firma Nuclear Data wurde ein Programm entworfen, welches gestattet, für jedes einfallende Alpha-Teilchen sowohl seine Energie als auch die Zeit seiner Ankunft zu registrieren. Hierbei handelt es sich um eine „Ereignis nach Ereignis Datenerfassung (event by event)". Unter Verwendung von Rechenanlagen lassen sich die so registrierten Ereignisse derart aufarbeiten, daß sowohl ein übliches Alpha-Spektrum als auch der zeitliche Abfall der Intensität einer bestimmten Alpha-Energie bestimmt werden kann.

Im einzelnen hat dieses Programm folgende Eigenschaften :

1.) Der Speicher des 4096 - Kanal - Analysators wird in x - Richtung in zwei Gruppen von je 2048 Kanälen aufgespalten .

2.) Die zweite Gruppe dient zur Aufnahme des Spektrums in der übli - chen Weise . Jedoch wird hier die Auflösung (conversion gain) des Analog - Digital - Wandlers durch Addition des Inhalts jeweils zweier Kanäle von 4096 auf 2048 reduziert . Dieses so erhaltene Spektrum kann auf einem Sichtgerät dargestellt und digital ausgegeben werden . Damit läßt sich der Ablauf des Experiments ständig überwachen .

3.) Die erste Gruppe wird in der y - Richtung aufgespalten in zwei Hälften zu je 4096 Kanälen . Das entspricht einer Speicherkapazität von jeweils 12 bit .

4.) In der unteren Hälfte wird die sonst übliche Bezeichnung geändert. Die Energie wird mit einer Auflösung 4096 der y - Richtung zugeordnet. Die x - Achse schreitet mit jedem Ereignis um eine Einheit fort , dh. jedem analysierten Impuls wird eine Nummer ín der Reihenfolge seines Eintreffens zugeteilt.

5.) Die obere Hälfte hat mit der unteren die Nummerierung der x - Achse gemeinsam . In y - Richtung wird in der oberen Hälfte zu jedem Ereignis eine Zeitinformation gespeichert . Dadurch ist jedes registrierte Teilchen gekennzeichnet durch a.) eine Nummerierung , b.) seine Energie und c.) den Zeitpunkt seiner Emission .

6.) Im Kanal 0 wird in üblicher Weise die fortlaufende Meßzeit registriert.

7.) Wenn alle 2048 möglichen Plätze der x - Achse durch registrierte Ereignisse besetzt sind , wird der Gesamtinhalt des Speichers auf Magnetband ausgegeben , gelöscht und sodann das Programm neu gestartet. Die Dauer der Unterbrechung der Analyse liegt bei etwa 1 sec . Dieses Verfahren wird auch als „ Buffer - Tape - Mode " bezeichnet.

8.)Ein Zeitintervall in der oberen Hälfte kann je nach Vorwahl auf der Analysatoruhr 10^{-2} sec , 10^{-1} sec oder 1 sec bedeuten . Da nur 4096 Plätze in y - Richtung zur Verfügung stehen , beträgt die maximale Meßzeit 4096 sec . Nach Ablauf dieser Zeit beginnt die Zählung wieder bei 0. Der Sprung von 4096 auf 0 wird im Speicher gekennzeichnet durch ein Ereignis der Energie 0 zur Zeit o. Die im Kanal 0 gespeicherte fortlaufende Zeit kann ebenfalls nur den Maximalwert 4096 erreichen. Es

wird aber gleichzeitig eine Zahl registriert , die angibt , wie oft der Zeitwert 4096 erreicht worden ist . Die Einführung eines Teilchens der Energie 0 zur Zeit 0 ist notwendig , da es bei Langzeitmessungen geringer Aktivität während eines oder mehrerer Zeitintervalle von je 4096 Einheiten u. U. kein Ereignis geben kann .

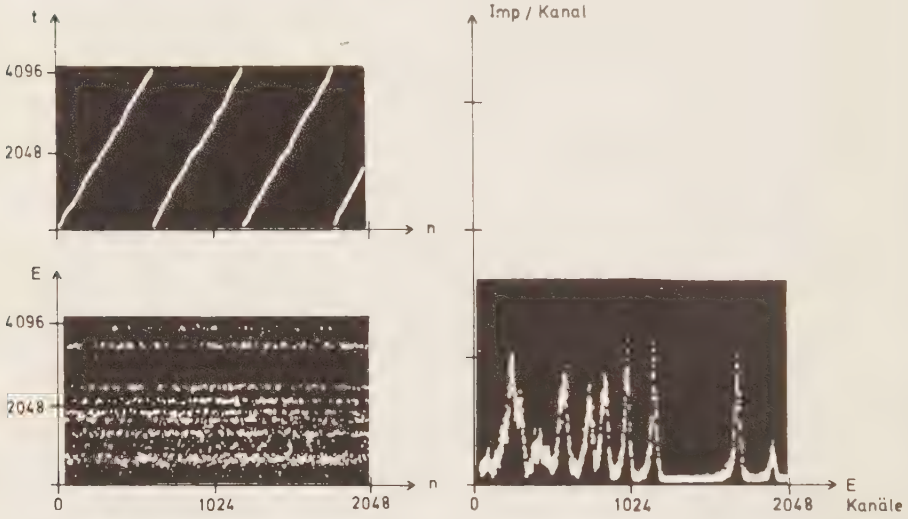


Abb. 22 Energie - Zeit - Speicherung im Analysator. Dargestellt ist der Ablauf der Analyse einer Langzeitbestrahlung. Die rechte Hälfte des Bildes zeigt das Normalspektrum, die linke Hälfte unten die Energie- und oben die Zeitaufnahme.

Die Abb. 22 verdeutlicht in 3 Polaroid - Aufnahmen dieses Verfahren . Abb. 23 zeigt ein Teletype - Protokoll . Als Beispiel ist der Inhalt der ersten 15 Kanäle einer Messung ausgegeben worden . Als erstes „Ereignis " registriert ist die Zeit in Spalte 2 , Zeile 1 : 1440 Zeiteinheiten und in Spalte 3 , Zeile 1 bedeutet die 3 , daß bei Ende der Messung die Zeit 4096 Einheiten insgesamt 3 mal durchlaufen worden ist . Die Gesamtmeßzeit beträgt also z. B. (3 · 4096 + 1440) sec . In den

```
* TP      TIME  PRINT
IN  GROUP  1  FROM  1  TO  15

      1     1440      3     245      8     555     12
      4     1497     16     155     29    1171     38
      7     1698     47     545     53    1526     53
     10     1653     55     503     57     575     60
     13     1542     82    3446    102    1682    103
```

Abb. 23 Teletype - Protokoll . Erläuterung im Text .

Spalten 2 , 4 und 6 ist in allen anderen Fällen die Energie eines Teil - chens , ausgedrückt als Kanalzahl der y-Achse , in den Spalten 3 , 5 und 7 die ihm entsprechende Zeitinformation notiert . Die Spalte 1 gibt jeweils die Nummer des folgenden Ereignisses an . Das Ereignis Nr. 15 hat also die dem Kanal 1682 entsprechende Alpha - Energie und ist 103 sec nach Meßbeginn registriert worden .

Gleichzeitig , aber unabhängig von dieser Arbeit, ist in Berkeley , USA , von Eppley et al. [28] eine ähnliche Methode eingeführt worden.

2. 6. Targets

Die in dieser Arbeit verwendeten Wismut - bzw. Blei - Targets sind durch Bedampfen von dünnen Aluminium - Folien mit metallischem Wismut bzw. Blei hergestellt worden. Für die Uran - bzw. Thorium - Targets wurde UF_4 bzw. ThF_4 verwendet . Die Dicke der Thorium-Targets , die zwischen 10 und 160 ug/cm^2 beträgt , kann aus der Alpha - Aktivität des ^{232}Th bei 4. 01 und 3. 95 MeV in einem kalibrierten Alpha - Meßplatz bestimmt werden .

2. 7. Flußmessung

Zur Bestimmung des Protonenflusses werden drei 30 bzw. 45 µm dicke Aluminium-Folien von genau der gleichen Abmessung wie das

Target direkt an diesem befestigt. Entsprechend einer Methode von Cumming[29] wird durch Ermittlung der Gamma-Aktivität des ^{24}Na bzw. ^{22}Na aus der Reaktion ^{27}Al (p, 3pn)^{24}Na bzw. ^{27}Al (p, 3p3n)^{22}Na der Protonenfluß berechnet. Für den Wirkungsquerschnitt dieser Reaktionen wird der Wert σ = 11 mbarn bzw. σ = 18 mbarn verwendet.

3. Ausführung des Experiments und Diskussion der Ergebnisse

Nach Beendigung von Aufbau und Überprüfung der Meßeinrichtungen kann mit den Messungen , die zur Lösung der in der Einleitung genannten Aufgaben dienen, begonnen werden. Im Vordergrund steht dabei die Ermittlung des Wirkungsquerschnitts einer Reaktion A (p, xp yn) B für ein Alpha-Strahlung emittierendes Nuklid B. Um den Wirkungsquerschnitt bestimmen zu können, muß das durch die genannte Reaktion gebildete Nuklid B durch Energie, Halbwertzeit und Zerfallsschema eindeutig identifiziert sein. Die experimentelle Arbeit ist also in folgender Weise durchzuführen:

1. Messung des Alpha-Spektrums des bestrahlten Targets bei verschiedenen Bestrahlungszeiten sowie Energie-Eichung.
2. Bestimmung der Halbwertzeiten der einzelnen Peaks und Zuordnung dieser Peaks zu Zerfallsreihen.

Aus den gesammelten Daten und der Impulsrate der identifizierten Peaks können danach die Wirkungsquerschnitte errechnet werden.

Zur Erleichterung des Lesens dieser Arbeit ist ein Ausschnitt aus der Nuklidkarte[30] als Anhang am Ende beigelegt.

3.1. Auswahl der Targetmaterialien

Von Pate und Poskanzer[17] sind als Targetmaterialien Uran und Thorium zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten verwendet worden. Von Interesse für die Überprüfung von Reaktionsmodellen wären neben den beiden genannten Elementen Targets aus Wismut oder Blei.

3.1.1. Bestrahlungen von Blei-Targets

Aus der Nuklidkarte[30] ist zu entnehmen, daß bei der Bestrahlung von Blei mit Protonen mit Ausnahme der kurzlebigen neutronenarmen Bi- oder Pb-Isotope praktisch keine Alpha-Strahlung emittierenden Nuklide erzeugt werden. Es ist daher bei diesen Versuchen nur geringe Alpha-Intensität zu erwarten.

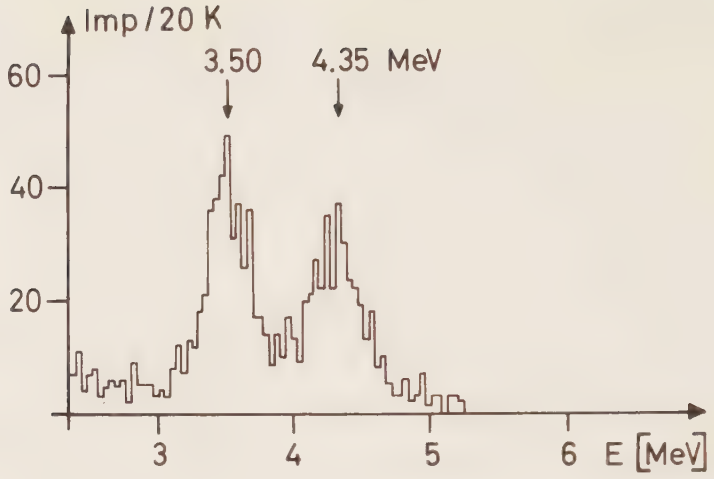


Abb. 24 Alpha - Spektrum eines 24 Stunden mit 600 MeV Protonen bestrahlten Bleitargets . Einzelheiten im Text .

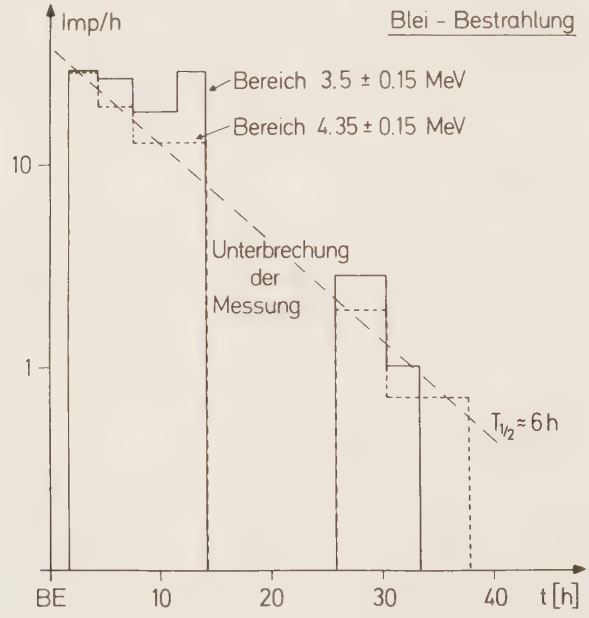


Abb. 25 Zeitlicher Abfall der Intensität der Peaks bei 3. 50 und 4. 35 MeV .

Die Abb. 24 zeigt das Alpha - Spektrum eines Blei - Targets von 21 $\mu g/cm^2$ Dicke nach einer 24 - stündigen Bestrahlung mit 600 MeV Protonen . Die Gesamtmeßzeit für dieses Spektrum beträgt 24.4 h , der Meßbeginn liegt bei 1 h nach Bestrahlungsende . Zu erkennen sind zwei Energiemaxima bei 3.5 $\pm$ 0.2 MeV und 4.35 $\pm$ 0.2 MeV. Über den zeitlichen Abfall der Intensität dieser Peaks lassen sich nur ungenaue Angaben machen , da die Messung nicht wiederholt wurde . Der Peak bei 3.5 MeV scheint längere Zeit eine konstante Zählrate zu haben (Abb. 25) , um dann schnell abzufallen , während für den Peak bei 4.35 MeV eine Halbwertzeit von etwa 6 h ermittelt worden ist. Eine Identifizierung der beiden Peaks ist ohne größeren Aufwand nicht möglich .

Blei - Targets sind auch mit Bestrahlungszeiten von 10 sec , 1 min und 10 min dem Protonenstrahl ausgesetzt worden . Die erzielten Intensitäten waren dabei aber so gering , daß die Meßreihe wegen ihres hohen Zeitbedarfs nicht fortgesetzt wurde.

3. 1. 2. Bestrahlungen von Wismut - Targets

Für die Wismut - Target Bestrahlungen gilt ungefähr das gleiche wie für die von Blei - Targets . An bekannten Alpha - Strahlern können verschiedene Polonium - Nuklide entstehen , jedoch liegt der Alpha - Anteil dieser Nuklide unter 1 % mit Ausnahme von ^{210}Po , ^{209}Po und ^{208}Po , die aber widerum sehr lange Halbwertzeiten ($\tau_{1/2} \geq 138$ d) haben , während alle neutronenarmen Po - Isotope sehr kurzlebig sind. Somit ist wie beim Blei die Ausbeute an Alpha - Strahlung emittierenden Nukliden in diesem Experiment sehr gering .

Gefunden wurden zwei Peaks bei 5.4 $\pm$ 0.2 MeV und 5.8 $\pm$ 0.2 MeV. Wegen der geringen Ausbeute und der hohen Kosten der Experimente wurde auf weitere Versuche verzichtet . Ein Identifizierungsversuch wurde nicht unternommen.

3. 1. 3. Bestrahlung von Uran-Targets

Wie schon ein Blick auf die Nuklidtafel zeigt, ist bei der Bestrahlung von Uran die Ausbeute an Alpha-Strahlung emittierenden Nukliden wesentlich höher. Das Experiment zeigt das erwartete Ergebnis. Die Versuchsmessungen mit Uran-Targets sind jedoch noch mit dem schlecht auflösenden Detektorsystem ohne Magneten gemacht worden. Auf eine Auswertung ist deshalb verzichtet worden. Aus Zeitgründen konnte die Messung später mit dem gutauflösenden System nicht wiederholt werden. Daher werden hier keine Ergebnisse angegeben.

3. 1. 4. Bestrahlungen von Thorium-Targets

Während bei den Bestrahlungen der Blei- und Wismut-Targets nur geringe Alpha-Aktivitäten beobachtet werden können, zeigen die entsprechenden Messungen an Uran-Targets bereits eine Vielzahl von Peaks. Die gemessene Aktivität der Uran-Targets aber wird von der bestrahlter Thorium-Targets noch um mindestens eine Größenordnung übertroffen. Das ist auch zu erwarten, da nach Brandt et al.[31] der Spaltwirkungsquerschnitt von Uran wesentlich höher ist als der des Thoriums. Bei Wismut und Blei ist der Spaltquerschnitt zwar noch geringer als beim Thorium, die erzeugten Nuklide zerfallen aber praktisch ausnahmslos durch Elektroneneinfang.

Da durch den Einbau des Magneten zwischen Target und Detektor bei den Thorium-Experimenten sich die Geometrieverhältnisse und damit die Ansprechwahrscheinlichkeit sehr verschlechtert haben, müssen die Einzelbestrahlungen von 10 sec, 1 min oder 10 min Dauer sehr oft wiederholt werden. Erst dadurch werden Meßergebnisse mit hinreichend guter statistischer Genauigkeit erzielt. Aus diesem Grunde konzentriert sich die im folgenden zu beschreibende Arbeit ausnahmslos auf die Thorium-Targets. Eine weitere Untersuchung von Blei-, Wismut- oder Uran-Targets ist erst nach einem Umbau der Meßapparatur zu kürzeren Distanzen zwischen Target und Detektor sinnvoll.

Die Meßreihen mit Thorium - Targets können in Langzeit - und Kurzzeitbestrahlungen unterteilt werden .

Unter Kurzzeitbestrahlungen sind zu verstehen Einzelbestrahlungen von 10 sec , 1 min oder 10 min Dauer . Die Bestrahlungen und die anschließenden Messungen der erzeugten Alpha - Strahlung werden durchgeführt mit der in den Abschnitten 2. 2. und 2. 3. beschriebenen ON-LINE - Apparatur . Das Target wird also bei laufendem Strahl in die Bestrahlungsposition Pos. 1 (Abb. 4) gefahren und dort für eine bestimmte Bestrahlungszeit - 10 sec , 1 min oder 10 min - dem Protonenstrahl ausgesetzt . Nach Beendigung einer derartigen Bestrahlung gelangt das Target innerhalb von 4 sec vor den Detektor , beim Durchfahren der Lichtschranke L in Pos. 2 wird der Analysator gestartet und für eine bestimmte Zeit die Aktivität des Targets gemessen . Bei Schluß der Meßzeit wird das Target wieder in die Position 1 gefahren zur folgenden Bestrahlung . Dieser Vorgang muß häufig - bis zu 160 mal - wiederholt werden . Nach jedem Meßvorgang werden die ermittelten Daten ausgegeben . Die Addition der so erhaltenen Einzelspektren ergibt das Gesamtspektrum .

Für die Langzeitbestrahlungen werden die Targets der Einfachheit halber direkt vor dem ISOLDE - Target im Luftspalt befestigt . Nach Beendigung der Bestrahlung - bisher sind Bestrahlungen zwischen 2 und 30 h Dauer ausgeführt worden - werden die Targets nach Marburg transportiert , wo dann bis zu vier Wochen lang die Alpha-Aktivität untersucht werden kann . Zwischen Bestrahlungsende und Meßbeginn liegen in diesem Fall mindestens 10 Stunden .

Die Tabelle 2 gibt einen Überblick über alle bisher durchgeführten Bestrahlungen von Thorium - Targets . In der Spalte 2 ist die Targetdicke angegeben , einmal ermittelt durch Wägung , zum anderen bestimmt durch die Alpha-Aktivität des ^{232}Th - Peaks bei 4. 01 und 3. 95 MeV. Für alle Rechnungen wird die durch die Alpha-Aktivität festgestellte Dicke verwendet . In der dritten Spalte ist die Gesamtzahl der Target-

Datum	Targetdicke in $\mu g \cdot cm^{-2}$ ermittelt durch		Targetatome $^{232}Th \times 10^{17}$	Gesamtprotonenzahl $\times 10^{-12}$	Bestrahlungs-Zeit/Einzelbestrahlung	Zahl d. ausgeführten Bestrahlungen	Meßbeginn nach Ende d. Bestrahlungen	Meßzeit je Bestrahlung	Verwertete Bestrahlungen	Geometriefaktor
	Wägung	Aktivator								
15.11.70	71 ± 4	96.1 ± 1.5	26.06	223.5	10 sec	98	4 sec	8 min		
1.12.70	57 ± 2	49.9 ± 1.2	13.6 ± 0.4	269.5 ± 10.7		136	4 sec	8 min	136	$2.33 \pm 0.21 \times 10^{-4}$
18.3.71				43.6		17	4 sec	8 min		
14.7.71	100 ± 5					41	4 sec	8 min		
24.11.70	23 ± 2				1 min	121	4 sec			
3.12.70	21 ± 1	96.1 ± 1.5	26.1 ± 0.4	160.6 ± 9.3		21	4 sec	30 min	13	$2.33 \pm 0.21 \times 10^{-4}$
8.12.70	54 ± 4	52.9 ± 1.5	14.4 ± 0.4	200.2 ± 11.7		33	4 sec	30 min	32	
14.12.71	140	165.0 ± 3.0	44.9 ± 0.8	169.0 ± 5.3		21	4 sec	30 min	21	
8.3.71	25 ± 4			1708.3	10 min	29.8	4 sec	60 min		$2.33 \pm 0.21 \times 10^{-4}$
14.11.71	79 ± 5	98.7 ± 2.4	26.9 ± 0.7	2029.3 ± 22.3	10 min	21	4 sec	60 min	21	
Febr. 71	25 ± 4	19.6 ± 0.5	4.5 ± 0.1	16742 ± 196	29 h 57	1	13.65 h			35.8×10^{-3}
März 72		161.9 ± 3.0	37.9 ± 0.8	16402 ± 42.6	18 h	1	26.38 h			$5.72 \pm 0.02 \times 10^{-2}$
März 72		46.2 ± 1.3	10.8 ± 0.4	16402 ± 42.6	18 h	1	80.32 h			
Jan. 73		30.4 ± 0.7	7.1 ± 0.16	1195.5 ± 30	2 h	1	58.75 h			$1.83 \pm 0.02 \times 10^{-1}$
Jan. 73		30.9 ± 0.7	7.2 ± 0.15	1195.5 ± 30	2 h	1	35.61 h			
Jan. 73		7.0 ± 0.3	1.73 ± 0.05	1195.5 ± 30	2 h	1	21.41 h			

Tabelle 2 Bestrahlungsdaten

atome angegeben . Spalte 4 gibt die aus der Reaktion ^{27}Al (p , 3p 3n)^{22}Na bzw. ^{27}Al (p , 3p n)^{24}Na ermittelte Protonenzahl an , der das Target bei der Bestrahlung ausgesetzt war . In Spalte 5 wird die Bestrahlungszeit pro Einzelbestrahlung aufgeführt , in Spalte 6 die Zahl der ausgeführten Bestrahlungen . Die siebente Spalte gibt den Meßbeginn nach Bestrahlungsende an , die achte die Meßzeit pro Bestrahlung. Schließlich wird in Spalte 9 aufgeführt , wieviele Bestrahlungen zur Ermittlung des Wirkungsquerschnitts verwendet werden konnten , da infolge Geräte - oder Strahlausfall eine Reihe von Einzelbestrahlungen unberücksichtigt bleiben mußten . In der zehnten Spalte wird abschließend der Geometriefaktor η angegeben .

Wie zu ersehen , sind die Bestrahlungen von 10 sec , 1 min und 10 min Dauer sowie solche von mehreren Stunden häufig wiederholt worden . Es fehlen jedoch Bestrahlungen , welche wenige Stunden dauerten und mit deren Analyse etwa 1 h nach Bestrahlungsende begonnen werden konnte.

3. 2. Alpha - Spektren

3. 2. 1. Alpha - Spektren der Kurzzeitbestrahlungen

In den Abbildungen 26 bis 28 sind Alpha - Spektren dargestellt , die nach Kurzzeitbestrahlungen von Thorium - Targets aufgenommen wurden . Die Abb. 26 ist entstanden durch Addition aller Einzelspektren der 10 sec Bestrahlungen bei einer Meßzeit von jeweils 8 min . Wie man aus Tabelle 2 ersieht , sind Gruppen von Einzelspektren zu sehr verschiedenen Zeiten aufgenommen worden . Dabei mußten gelegentlich Verstärker oder ADC gewechselt werden . Die Addition der Einzelspektren verbessert zwar die statistische Genauigkeit , setzt aber die Halbwertsbreite der Peaks von etwa 30 keV auf 35 bis 40 keV herauf .

Für die Abb. 27 der 1 min - Bestrahlungen mit je 30 min Meßzeit gilt das über die Abb. 26 gesagte . Die Spektren dieser beiden Bestrahlungsreihen unterscheiden sich nur unwesentlich .

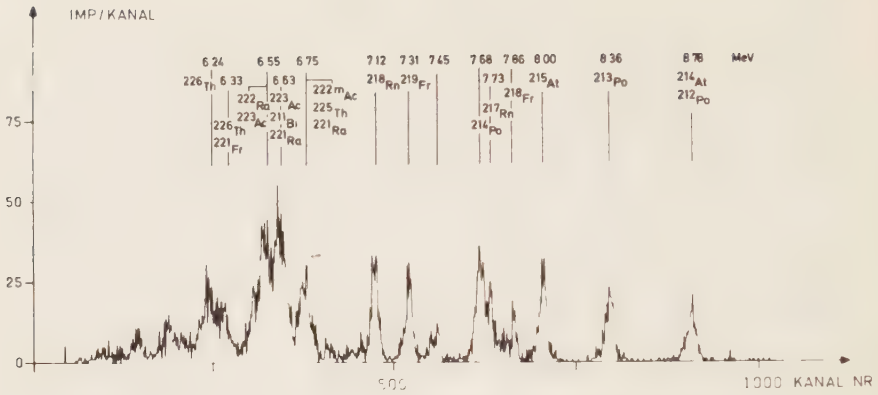


Abb. 26 Alpha - Spektrum von Thorium-Targets nach einer Serie von 10 sec - Bestrahlungen. Dieses Spektrum ist entstanden durch Addition von 280 Einzelspektren von je 8 min Meßzeit.

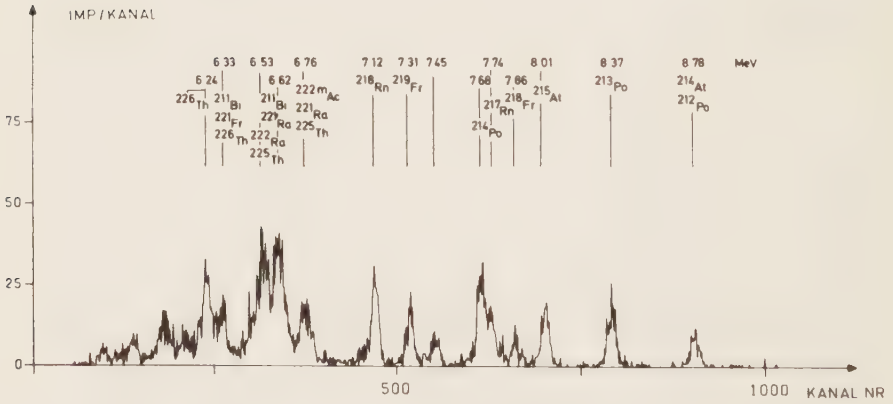


Abb. 27 Alpha - Spektrum von Thorium-Targets nach einer Serie von 1 min - Bestrahlungen. Dieses Spektrum ist entstanden durch Addition von 186 Einzelspektren von je 30 min Meßzeit.

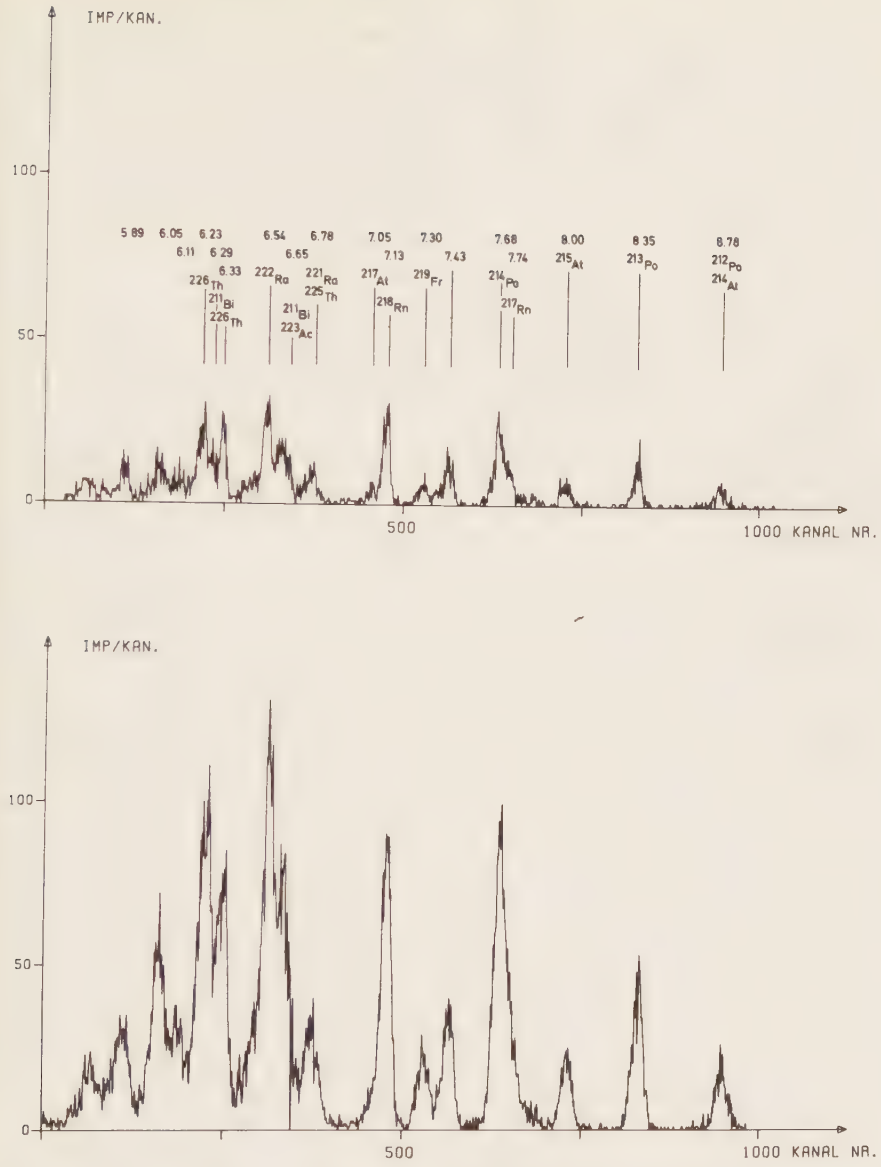


Abb. 28 Alpha-Spektum von Thorium-Targets nach einer Serie von 10 min - Bestrahlungen. Das obere Spektrum entstand durch Addition von 21 Messungen von je 60 min Dauer eines 25 $\mu g/cm^2$ dicken Targets, das untere aus ebenfalls 21 Messungen von je 60 min mit einem 98.7 $\mu g/cm^2$ dicken Target.

In der Abb. 28 ist oben das Alpha - Spektrum aufgetragen , welches aus einer Serie von 10 min - Bestrahlungen bei einer Meßzeit von je 60 min mit einem dünnen Target (25 $\mu g/cm^2$) entstanden ist und unten analog dazu das eines dicken Targets (98.7 $\mu g/cm^2$) . Die Auflösung für das dickere Target unterscheidet sich nur unwesentlich von der des dünneren .

Vergleicht man nun die 10 min - Spektren (Abb. 28) mit den 10 sec- bzw. 1 min - Spektren (Abb. 26 und 27) , so erkennt man einige Unterschiede , die bei der Identifizierung der einzelnen Peaks von Bedeutung sind . Als ein Beispiel seien die Peaks bei 8.00 MeV und 8.37 MeV angeführt . Wie später bei der Untersuchung der Halbwertzeiten der einzelnen Peaks ausführlich dargestellt wird , zerfällt der Peak bei 8.00 MeV , der dem ^{215}At zuzuschreiben ist , mit der Halbwertzeit des ^{223}Ac , nämlich 2.2 min . Das ^{213}Po , das dem Peak bei 8.37 MeV zugeordnet wird , kann auf zwei Wegen entstehen , und zwar erstens aus dem ^{221}Ra mit 30 sec Halbwertzeit und zweitens aus dem ^{213}Bi mit einer Halbwertzeit von 46 min . Das 10 sec - Spektrum zeigt größere Intensität für das ^{215}At als für das ^{213}Po , beim 1 min - Spektrum erkennt man bei beiden Peaks etwa gleiche Intensität und beim 10 min - Spektrum ist die ^{213}Po - Aktivität bei weitem höher als die ^{215}At - Aktivität . Wenn nun der 8.00 MeV - Peak nur dem ^{215}At mit 2.2 min Halbwertzeit und der 8.37 MeV - Peak nur dem aus dem 3o sec ^{221}Ra entstandenem ^{213}Po zuzuschreiben wäre , müßte der 8.37 MeV - Peak in seiner Intensität bedeutend schneller abnehmen als der 8.00 MeV - Peak . In Wirklichkeit ist es umgekehrt . Die Ursache dafür ist der mit größer werdenden Meßzeiten auch größer werdende Anteil von ^{213}Bi mit einer Halbwertzeit $\tau_{1/2}$ = 46 min .

Nahezu alle Peaks können identifiziert werden . Darauf wird näher eingegangen bei der Ermittlung der Halbwertzeiten der einzelnen Peaks in Abschnitt 4.

3. 2. 2. Alpha - Spektren der Langzeitbestrahlungen

In den Abb. 29 a bis 29 j ist das Alpha - Spektrum eines 30 h lang bestrahlten Thorium - Targets in Abhängigkeit von der seit Bestrahlungsende vergangenen Zeit aufgetragen . Aus apparativen Gründen können leider keine Spektren gleicher Meßzeit dargestellt werden . Aus Mangel an Intensität wird die statistische Genauigkeit der Messung mit zunehmender Zeit schlechter . Die Gesamtmeßzeit der Reihe beträgt 652 h ≙ 27.2 d . Mit fortschreitender Zeit läßt sich der Zerfall einzelner Peaks gut verfolgen , ebenso das stärkere Hervortreten der Langzeitkompo - nenten . Da die Messung in einem nicht klimatisierten Raum stattgefunden hat , ließ sich eine geringfügige Temperaturdrift der Elektronik nicht vermeiden . Die Lage der Peaks mußte entsprechend korrigiert werden .

Die Abb. 30 zeigt einen Ausschnitt aus einem Spektrum eines 18 h lang bestrahlten Thorium - Targets . Herausgehoben ist hier der Bereich von 5.4 bis 6.5 MeV . Die Auflösung für dieses Spektrum liegt bei 25 keV Halbwertsbreite .

3. 3. Identifizierung der Nuklide durch Alpha-Energie und Halbwertzeit

Nahezu alle bekannten radioaktiven Nuklide können i. a. durch zwei oder mehrere Eigenschaften eindeutig identifiziert werden , z. B. durch ihre Massenzahl , die Art ihrer Strahlung , also z. B. Alpha- oder Beta - Strahlung , verbunden mit der Aussendung von Gamma- oder Röntgen-Strahlung , und schließlich die Halbwertzeit der Strahlung . Im vorliegenden Falle werden zur Identifizierung die Alpha-Energien der Nuklide und ihre Halbwertzeit benutzt . In den meisten Fällen kann jedoch nicht die Halbwertzeit des betreffenden Nuklids selbst gemessen werden , dann nämlich nicht , wenn dieses Nuklid in einer Zerfallskette steht und eine kürzere Halbwertzeit als irgendein beliebiges Elternteil hat . Befindet sich das Nuklid in einer Zerfallskette , die von zwei unabhängig

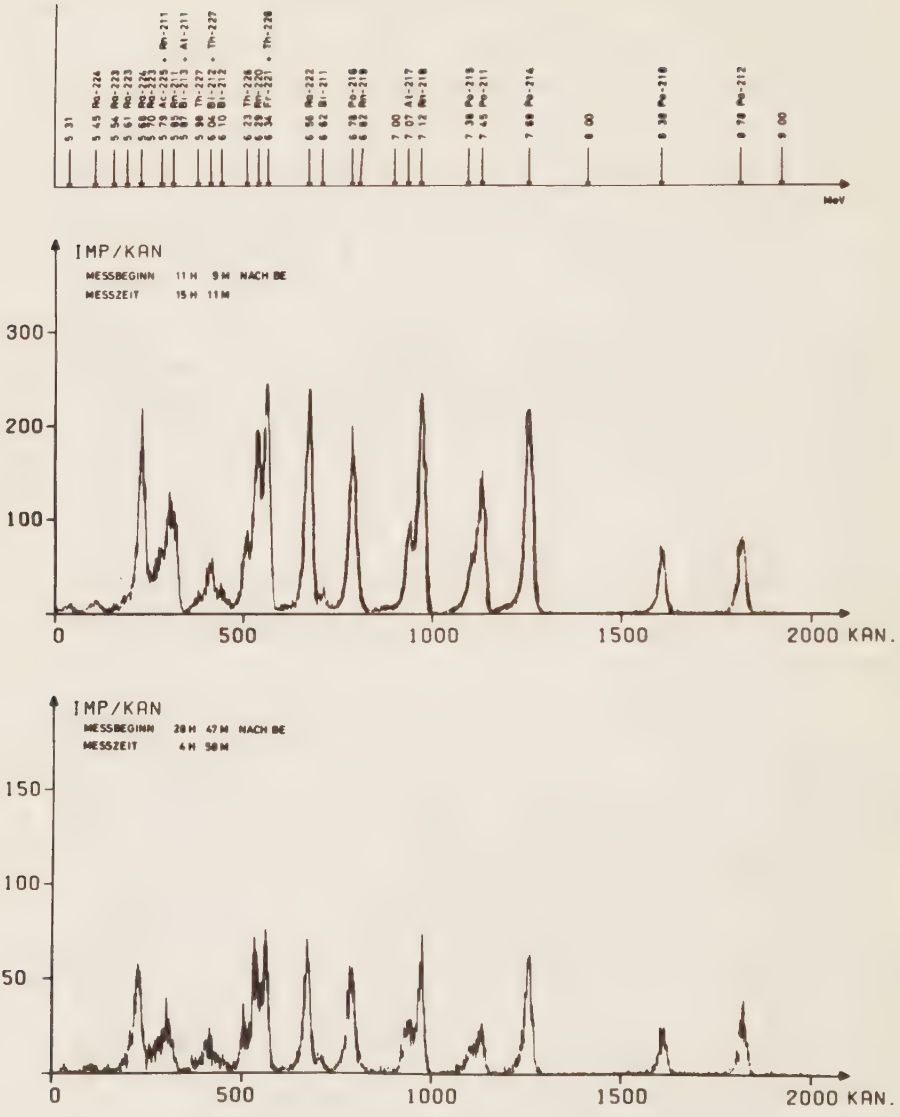
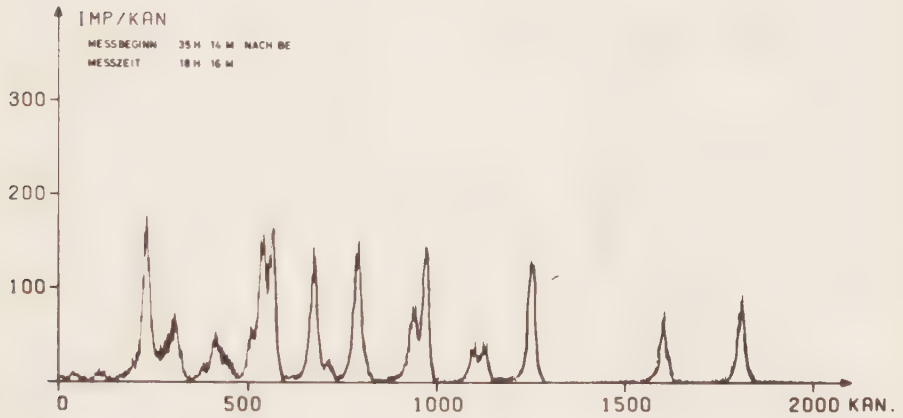


Abb. 29 a , b Alpha-Spektrum eines Thorium-Targets nach einer Bestrahlung von 30 h . Meßbeginn Abb. 29 a 11.15 h , Abb. 29 b 28 h nach Bestrahlungsende .



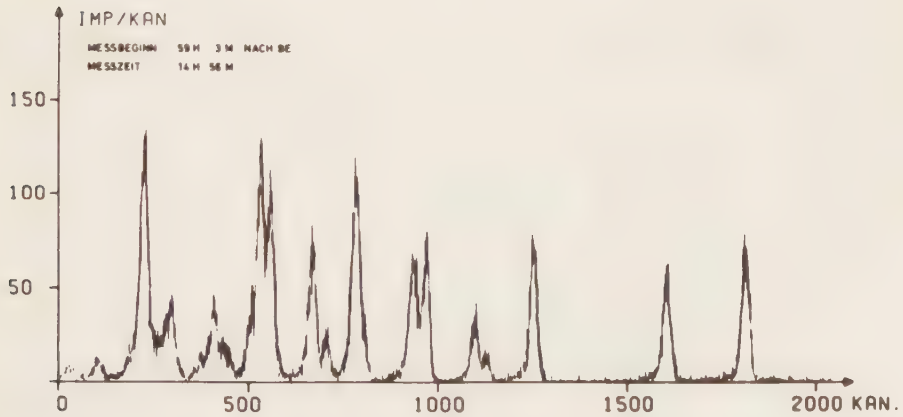


Abb. 29 c , d Alpha - Spektrum eines Thorium-Targets nach einer Bestrahlung von 30 h . Meßbeginn Abb. 29 c 35, 2 h , Abb. 29 d 59, 1 h nach Bestrahlungsende .

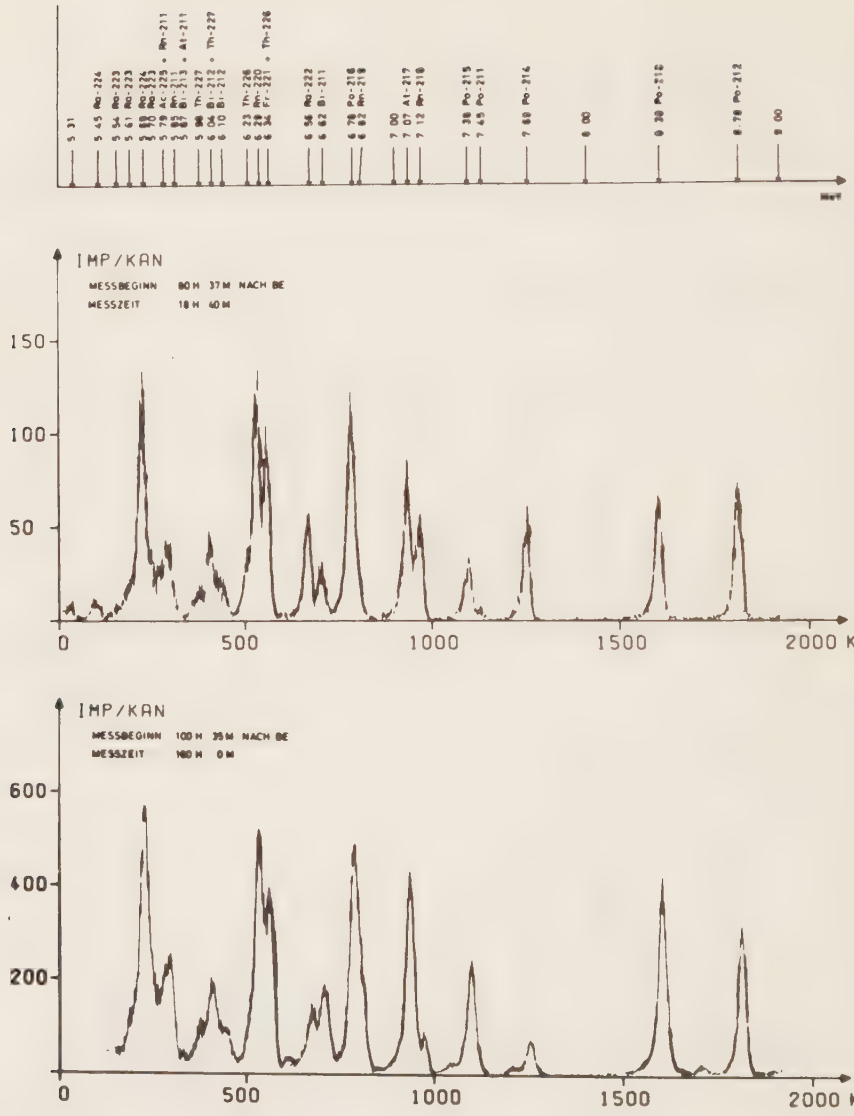


Abb. 29 e , f Alpha-Spektrum eines Thorium-Targets nach einer Bestrahlung von 30 h . Meßbeginn Abb. 29 e 80,6 h , Abb. 29 f 100,6 h nach Bestrahlungsende .

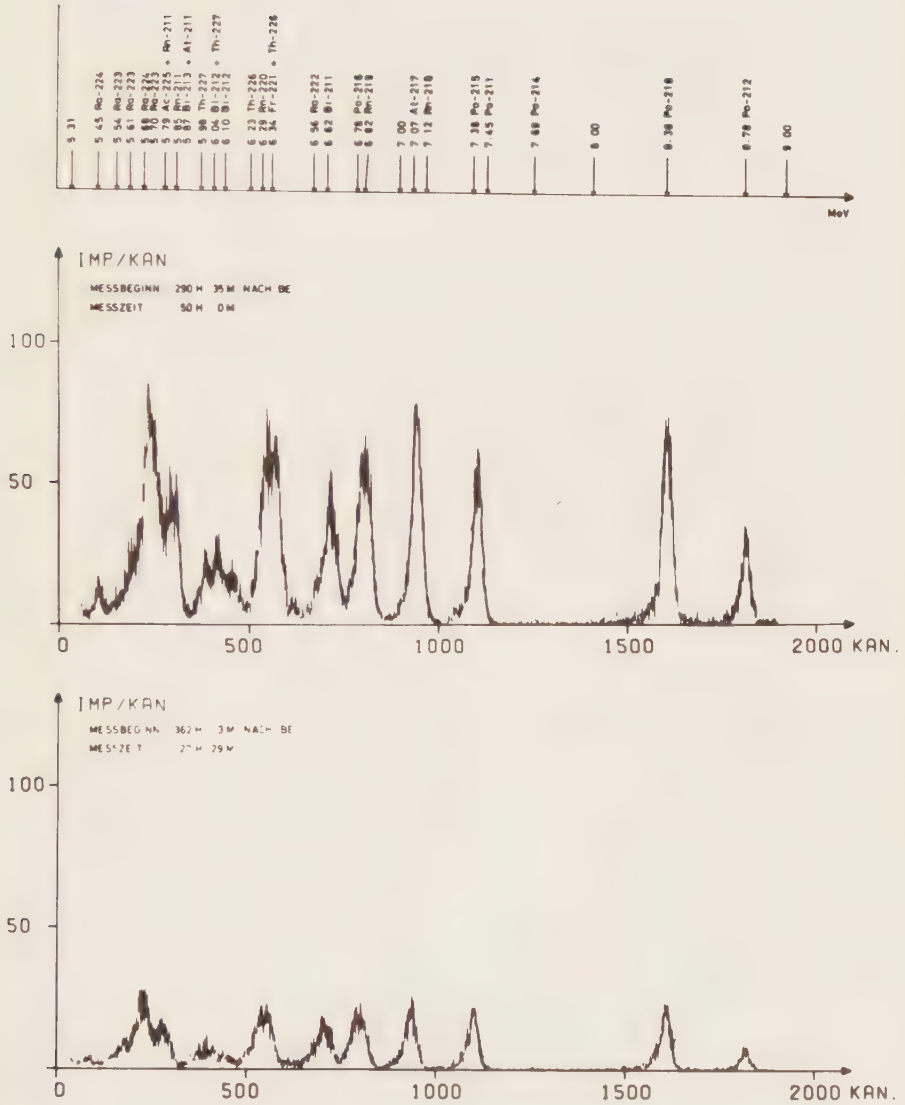
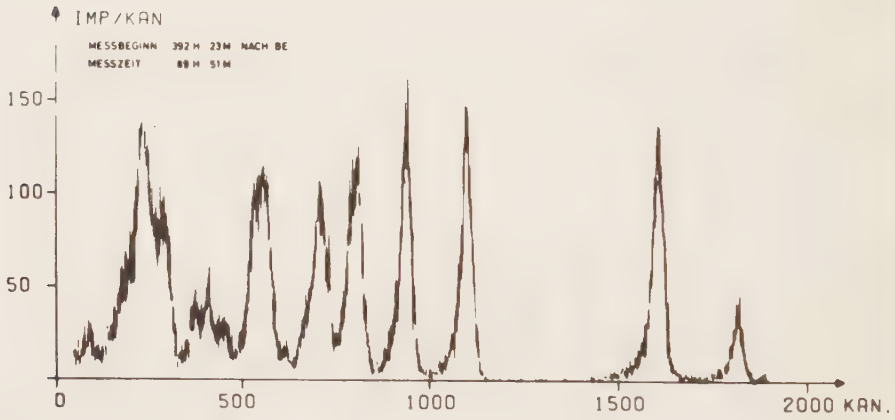


Abb. 29 g , h Alpha-Spektrum eines Thorium-Targets nach einer Bestrahlung von 30 h . Meßbeginn Abb. 29 g 290,6 h , Abb. 29 h 362,1 h nach Bestrahlungsende .



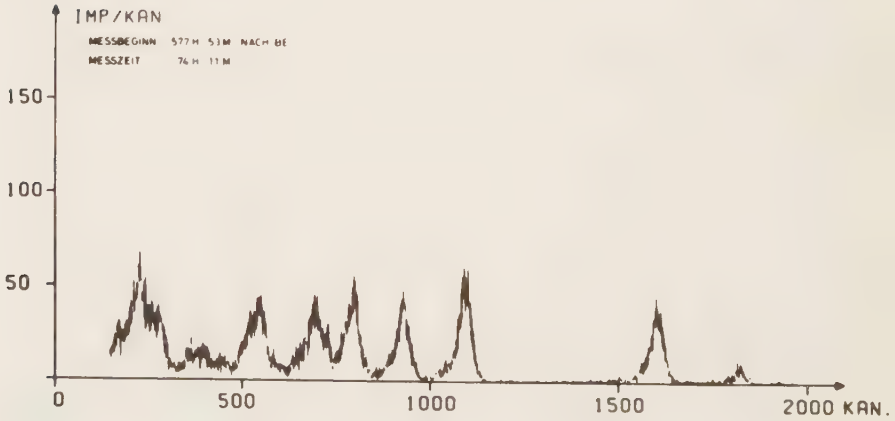


Abb. 29 i , j Alpha-Spektrum eines Thorium-Targets nach einer Bestrahlung von 30 h . Meßbeginn Abb. 29 i 392.4 h , Abb. 29 j 577.9 h nach Bestrahlungsende .

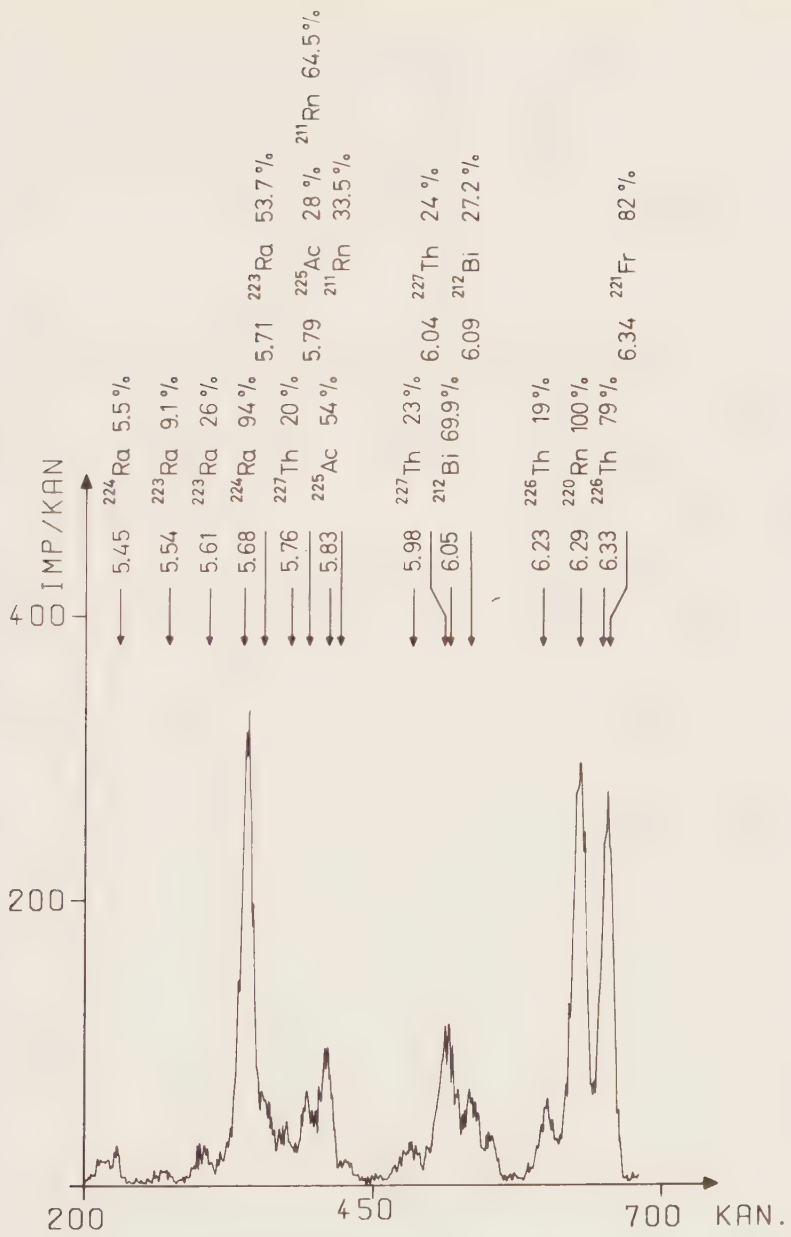


Abb. 30 Ausschnitt aus dem Alpha-Spektrum eines Thorium-Targets nach einer Bestrahlung von 18 h .

von einander gebildeten Nukliden ausgeht , so werden bei dem zu untersuchenden Nuklid zwei verschiedene Halbwertzeiten ermittelt , von denen keine die des Nuklids selbst ist . Das Nuklid mit der größeren Halbwertzeit zwingt infolge des eigenen langsamen Zerfalls allen folgenden Kettengliedern seine eigene Halbwertzeit auf , wenn deren Halbwertzeit kleiner als die des Mutternuklids ist .

Als Beispiel sei der Zerfall von ^{223}Ac als Primärglied einer Zerfallskette angenommen . Der Nuklidkarte[30] oder der Table of Isotopes[32] kann als Halbwertzeit des ^{223}Ac der Wert $\tau_{1/2}$ = 2. 2 min entnommen werden sowie seine Alpha-Energie von 6. 65 MeV . Wie aus den Abb. 26 bis 28 zu entnehmen ist , befindet sich diese Energie in einem Bereich , in dem es eine Vielzahl anderer Nuklide mit ähnlichen Energien und auch Halbwertzeiten gibt . Deshalb ist eine direkte Analyse dieser Energie unmöglich . Das ^{223}Ac zerfällt über folgende Kette :

$$^{223}\text{Ac} \xrightarrow[2.2\ \text{m}]{} {}^{219}\text{Fr} \xrightarrow[20\ \text{ms}]{} {}^{215}\text{At} \xrightarrow[0.1\ \text{ms}]{} {}^{211}\text{Bi} \xrightarrow[2.15\ \text{m}]{} {}^{207}\text{Tl} \xrightarrow[4.8\text{m}]{} {}^{207}\text{Pb}$$

Untersucht man nun den Energiepeak des durch Alpha - Zerfall des ^{223}Ac entstehenden ^{219}Fr , so findet man als dessen Halbwertzeit ebenfalls den Wert $\tau_{1/2}$ = 2. 2 min und nicht wie in der Literatur[30)32)] angegeben 20 msec . Das entsprechende gilt für den Peak der Tochter des ^{219}Fr , dem Nuklid ^{215}At mit 0. 1 msec Halbwertzeit (siehe auch Abb. 38 , 39 , 40) . Das letzte Glied dieser Kette, das durch Alpha - Emission zerfällt , das ^{211}Bi hat dagegen selbst eine Halbwertzeit von 2. 15 min , so daß man einen Peak der zwischen dem ^{223}Ac und dem ^{211}Bi liegenden Nuklide untersuchen muß , um zu entscheiden , ob der Ursprung der Kette beim ^{223}Ac oder z. B. erst beim ^{219}Fr liegt . In beiden Fällen würde das ^{211}Bi mit einer Halbwertzeit von etwa 2. 2 min zerfallen . Es besteht nun noch die Möglichkeit , daß neben dem ^{223}Ac auch das ^{227}Pa direkt gebildet worden ist . Dann hätten alle Peaks einen Zerfall , der durch die beiden Halbwertzeiten 2. 2 min und 38. 3 min bestimmt wird.

Alle Peaks , die gut von ihren Nachbarn getrennt sind , sind deshalb auf ihre Halbwertzeit untersucht worden . Wie schon erwähnt und auch aus

den Abb. 26 bis 28 hervorgeht , enthält der Energiebereich von 6.24 MeV bis 6.76 MeV eine große Anzahl von verschiedenen Nukliden . Die so entstandenen Summenpeaks , die ihren Ursprung in mehreren Nukliden mit verschiedenen Halbwertzeiten haben , können teilweise nicht mehr in ihre einzelnen Komponenten zerlegt werden . Ihre Identität kann nur indirekt über die Zerfallsdaten der anderen Kettenglieder gefunden werden .

Mutternuklid der Kette	Reaktionsgleichung	Bestrahlungstyp
^{227}Th	^{232}Th (p, p 5n) ^{227}Th	Langzeitbestrahlung
^{226}Th	^{232}Th (p, p 6n) ^{226}Th	Kurzzeitbestrahlung von 10 sec, 1 min, 10 min
^{225}Th	^{232}Th (p, p 7n) ^{225}Th	" "
^{226}Ac	^{232}Th (p,2p 5n) ^{226}Ac	Langzeitbestrahlung
^{225}Ac	^{232}Th (p, 2p 6n) ^{225}Ac	" "
^{223}Ac	^{232}Th (p, 2p 8n) ^{223}Ac	Kurzzeitbestrahlung von 10 sec, 1 min, 10 min
^{222m}Ac	^{232}Th (p, 2p 9n) ^{222m}Ac	Kurzzeitbestrahlung von 10 sec, 1 min
^{224}Ra	^{232}Th (p, 3p 6n) ^{224}Ra	Langzeitbestrahlung
^{222}Ra	^{232}Th (p, 3p 8n) ^{222}Ra	Kurzzeitbestrahlung von 10 sec, 1 min, 10 min
^{221}Ra	^{232}Th (p, 3p 9n) ^{221}Ra	" "
^{211}Rn	kumulativ aus ^{215}Ra , ^{219}Th (?)	Langzeitbestrahlung

Tabelle 3 Ausgangsnuklide der bei Bestrahlung von ^{232}Th mit 600 MeV Protonen entstehenden Zerfallsketten .

Zur Bestimmung der Halbwertzeit wird die Impulsrate eines Peaks in Abhängigkeit von der Zeit graphisch aufgetragen und dabei ein Näherungswert für die Halbwertzeit bestimmt. Dieser Näherungswert wird anschließend einem Least - Square - Fit - Programm (LSQ - Programm) nach Cumming [33] eingegeben, welches dann durch Ermittlung der Ausgleichsgeraden den besten Wert für die Halbwertzeit aus den eingegebenen Zerfallsdaten errechnet.

Im einzelnen sind auf diesem Weg die in Tabelle 3 angegebenen Zerfallsreihen identifiziert worden. Auf diese Reihen soll nun weiter eingegangen werden.

3. 3. 1. Die ^{227}Th - Reihe

In der Tabelle 4 sind die Zerfallsdaten dieser Reihe zusammengestellt. Dabei gibt die erste Spalte den Verlauf der Kette mit allen entstehenden Nukliden an, die zweite Spalte die aus der Literatur [30), 32)] entnommenen Alpha - Energien der einzelnen Nuklide bzw. die Kennzeichnung einer anderen Zerfallsart. Die dritte Spalte enthält die Halbwertzeiten der Nuklide entsprechend den Angaben der Literatur [30), 32)], die vierte dagegen die nach experimentellen Daten rechnerisch bestimmten Werte. Die folgende Spalte gibt den LSQ - Fit an. Dies ist ein Wert, der eine Aussage macht über die Güte der Ausgleichsrechnung. Es kann hier zu dieser Programmeigenschaft nur gesagt werden, daß eine gute Ausgleichsgerade vom Programm ermittelt worden ist, wenn der LSQ - Fit kleiner als etwa 1.5 ist (Cumming [33)]). Schließlich ist in der letzten Spalte noch angegeben, ob bei der Ermittlung der Halbwertzeit eine Kontamination durch ein anderes Nuklid vorgelegen hat. In diesem Fall muß dem Programm zusätzlich zum Näherungswert der Halbwertzeit des zu untersuchenden Nuklids die genaue Halbwertzeit der Kontamination als Konstante eingegeben werden. Dieses ist z. B. der Fall beim ^{227}Th - Peak selbst (Tabelle 4). Im Peak mit enthalten ist die Aktivität des ^{212}Bi, eines Tochterprodukts des ^{224}Ra, welches mit einer Halbwertzeit von 3.64 d zerfällt. Durch den Anteil an

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Ursprung
^{227}Th	6.04	18.72 d	(20.0 ± 7.3)	0.597	
↓	5.98		d		
			3.64 d		^{224}Ra
^{223}Ra	5.71	11.43 d			
↓	5.61				
^{219}Rn	6.82	3.96 sec			
↓	6.55				
^{215}Po	7.38	1.78 msec			
↓					
^{211}Pb	Beta	36.1 min			
↓					
^{211}Bi	6.62	2.15 min	(21.37±2.4)	0.710	
↓	6.28		d		
^{207}Tl	Beta	4.8 min			
↓					
^{207}Pb		stabil			

Tabelle 4 ^{227}Th - Reihe Reaktion ^{232}Th (p , p 5n) ^{227}Th

Die vom LSQ - Programm errechneten Werte für die Halbwertzeit sind in der 4. Spalte mit Fehlerangabe aufgeführt. Halbwertzeiten ohne Fehlerangabe bedeuten fest eingegebene Werte einer Komponenten , z. B. auch einer Kontamination. Die Angaben in der 2. und 3. Spalte sind Literaturwerte[30)32)].

^{212}Bi wird die Bestimmung der Halbwertzeit des ^{227}Th mit einem großen Fehler belastet . Bei dem zweiten untersuchten Peak dieser Reihe , dem 6.62 MeV - Peak des ^{211}Bi , liegt keine Kontamination durch ein anderes Nuklid vor , deshalb wird der Fehler hier geringer . Es muß

aber erwähnt werden, daß die Gesamtmeßzeit von etwa 27 Tagen die Halbwertzeit des ^{227}Th von etwa 19 Tagen nur geringfügig überschreitet und deshalb eine bessere Bestimmung von $\tau_{1/2}$ nicht möglich ist. Die Zählrate - beim ^{211}Bi etwa 50 Imp/h zu Beginn der Meßreihe - ist außerdem sehr gering. Der gewichtete Mittelwert für die Halbwertzeit von ^{227}Th ergibt sich aus den Daten der Tabelle 4 zu $\tau_{1/2} = 21.2 \pm 2.3$ d und ist damit in Übereinstimmung innerhalb der Fehlergrenzen mit dem Literaturwert von 18.72 d.

In Abb. 31 ist der Zerfall des ^{211}Bi-Peaks graphisch aufgetragen. Die Ausgleichsgerade des LSQ-Programms ist eingezeichnet. Hierdurch ist eindeutig gezeigt, daß über die Analyse des zeitlichen Abfalls einer Tochtersubstanz (6.62 MeV ^{211}Bi) die Existenz der Muttersubstanz (6.04 MeV ^{227}Th) nachgewiesen werden kann.

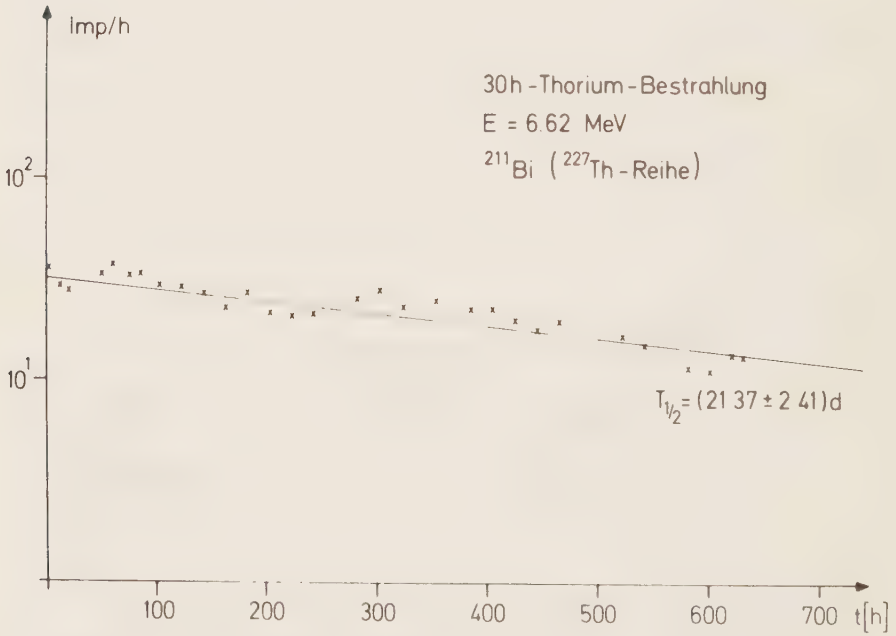


Abb. 31 Zerfallskurve des ^{211}Bi aus der ^{227}Th-Reihe.

3. 3. 2. Die $^{226}Th/^{222}Ra$ - Reihe

Die Spektren der Kurzzeitbestrahlungen (Abb. 26 bis 28) zeigen bei $E_\alpha = 7.12$ MeV und $E_\alpha = 7.69$ MeV Peaks , als deren Ursprung das ^{218}Rn bzw. ^{214}Po angenommen werden kann[30) , 32)]. Eine Untersuchung der Halbwertzeiten dieser Peaks für alle drei Bestrahlungszyklen ergibt zwei Komponenten , nämlich eine Kurzzeitkomponente von etwa 45 sec und eine Langzeitkomponente von etwa 30 min Halbwertzeit . Für die 10 min - Bestrahlung kann der Langzeitanteil des 7.12 MeV Peaks zu $\tau_{1/2} = 33.2 \pm 2.9$ min bestimmt werden (Abb. 32) . Damit ist dieser Peak dem ^{218}Rn , einer Tochter des ^{226}Th , zuzuordnen . Das Nuklid ^{226}Th hat eine Halbwertzeit von 31 min und eine Alpha-Energie von 6.34 MeV (79 % Anteil) bzw. 6.23 MeV (19 % Anteil) . Beide ^{226}Th - Peaks können im Spektrum identifiziert werden .

Der Kurzzeitanteil läßt sich aus den 10 sec - bzw. 1 min - Bestrahlungen zu $\tau_{1/2} = 52 \pm 10$ sec bzw. zu $\tau_{1/2} = 46.7 \pm 6.3$ sec ermitteln . Die Abb. 33 zeigt die Zerfallskurve des 7.12 MeV - Peaks für die 1 min - Bestrahlung . Damit kann innerhalb der Fehlergrenzen (2σ) angenommen werden , daß diese Kurzzeitkomponente vom ^{222}Ra stammt, welches eine Halbwertzeit von 38 sec hat .

Die Untersuchung des zweiten gut sichtbaren Peaks dieser Reihe , des ^{214}Po bei 7.69 MeV , stößt auf erhebliche Schwierigkeiten durch den eng benachbarten Peak des ^{217}Rn bei 7.74 MeV . Dieser stammt aus der $^{225}Th/^{221}Ra$ - Reihe (siehe 3. 3. 3.) und hat mit $\tau_{1/2} = 30$ sec für das ^{221}Ra eine dem ^{222}Ra sehr ähnliche Halbwertzeit , so daß keine Trennung der Komponenten möglich ist .

Wie aus der Nuklidkarte[30)] ersichtlich ist , zerfällt das ^{222}Fr über Beta - Emission mit einer Halbwertzeit von 14.8 min zum ^{222}Ra. Um zu überprüfen , ob ^{222}Fr primär beim Beschuß des ^{232}Th mit 600 MeV Protonen entstanden ist , ist bei den Zerfallsuntersuchungen dem Programm auch der Wert 15 min als Variable eingegeben worden . Das Programm

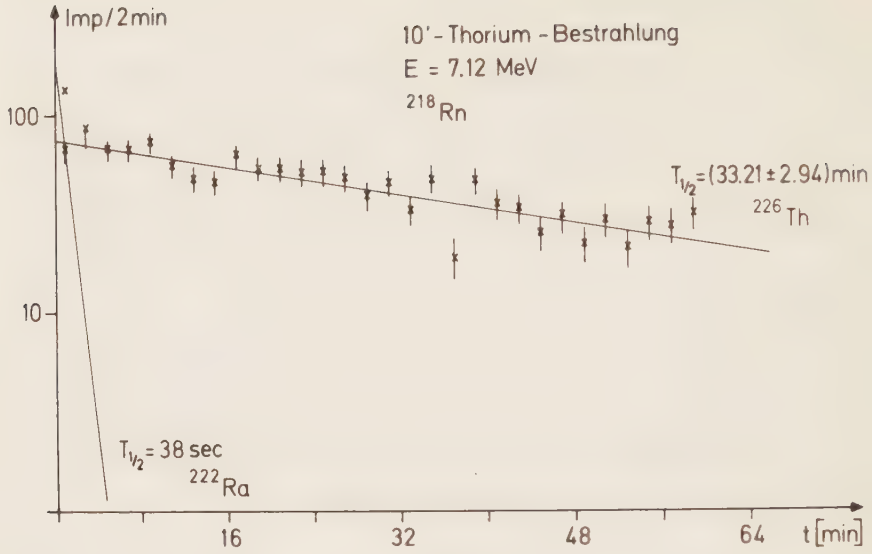


Abb. 32 Zerfallskurve des ^{218}Rn aus der $^{226}Th/^{222}Ra$ - Reihe, 10 min - Bestrahlung.

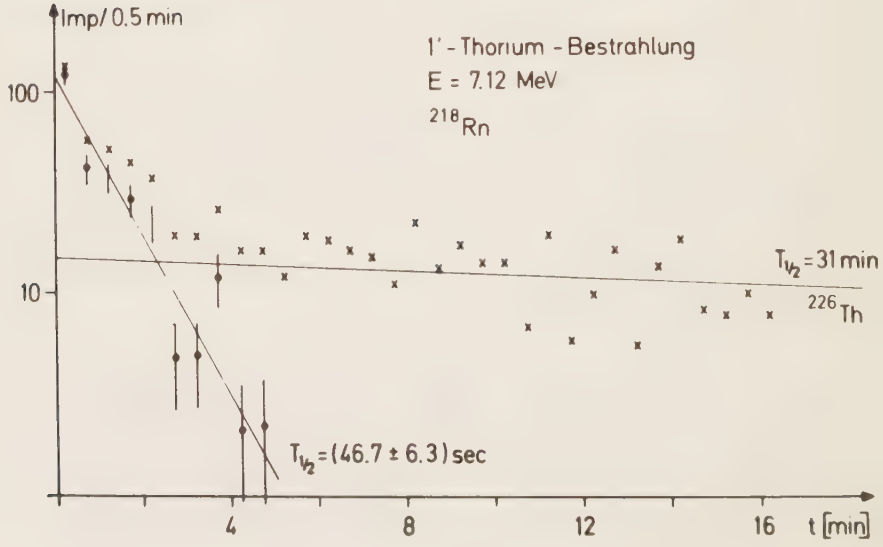


Abb. 33 Zerfallskurve des ^{218}Rn aus der $^{226}Th/^{222}Ra$ - Reihe, 1 min - Bestrahlung.

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	10 sec: Halbwertzeit des Peaks	10 sec: LSQ-Fit	1 min: Halbwertzeit des Peaks	1 min: LSQ-Fit	10 min: Halbwertzeit des Peaks	10 min: LSQ-Fit	Ursprung
^{226}Th	6.34 6.23	31 min							
↓ ^{222}Ra	6.56	38 sec							
↑ ^{222}Fr	Beta	14.8 min							
↓ ^{218}Rn	7.12	30 msec	(52 ± 10) sec 31 min	1.47	(46.7 ± 6.3) sec 31 min	1.30	38 sec (33.2 ± 2.9) min	1.17	
↓ ^{214}Po	7.69	162 µsec							
↓ ^{210}Pb	Beta	22 a							
↓ ^{210}Bi	Beta	5 d							
↓ ^{210}Po	5.31	138.4 d							
↓ ^{206}Pb		stabil							

Tabelle 5 ^{226}Th/^{222}Ra - Reihe Reaktion ^{232}Th(p, p 6n)^{226}Th und ^{232}Th(p, 3p 8n)^{222}Ra

Erläuterung siehe Text und Tabelle 4 .

zieht diesen Wert auf 31 min , die Halbwertzeit des ^{226}Th , so daß die direkte Bildung des ^{222}Fr nicht nachgewiesen werden kann .

Der gewichtete Mittelwert dieser Daten ergibt für die Halbwertzeit der Kurzzeitkomponenten , also des ^{222}Ra , $\tau_{1/2} = 48.2 \pm 5.3$ sec . Einen Überblick über den Verlauf der $^{226}Th/^{222}Ra$ - Reihe gibt die Tabelle 5.

3. 3. 3. Die $^{225}Th/^{221}Ra$ - Reihe

Die Zerfallsdaten der $^{225}Th/^{221}Ra$ - Reihe sind in Tabelle 6 aufgeführt. Diese Reihe ähnelt der $^{226}Th/^{222}Ra$ - Reihe , denn neben dem langlebigen ^{225}Th (8 min Halbwertzeit) wird auch das kurzlebigere ^{221}Ra (30 sec Halbwertzeit) direkt gebildet . Aus der Abb. 34 , die den Zerfall des Peaks $E_\alpha = 8.38$ MeV , ^{213}Po für die 10 min - Bestrahlung darstellt , geht hervor , daß in diese Reihe , genauer in den ^{213}Po - Peak , noch eine weitere Komponente hineinwächst . Dabei handelt es

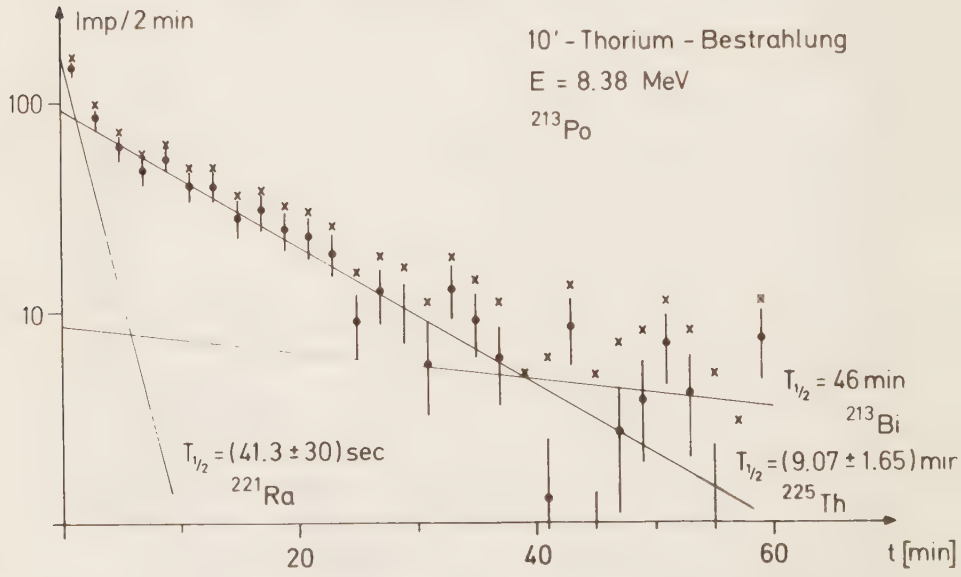


Abb. 34 Zerfall des ^{213}Po aus der $^{225}Th/^{221}Ra$ - Reihe , 10 min-Bestrahlung .

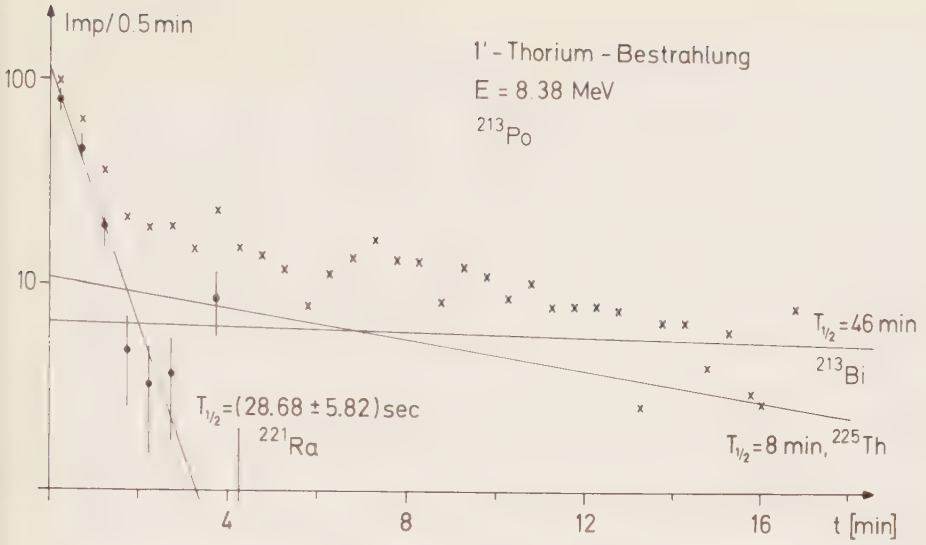


Abb. 35 Zerfall des ^{213}Po aus der ^{226}Th/^{221}Ra - Reihe , 1 min Bestrahlung .

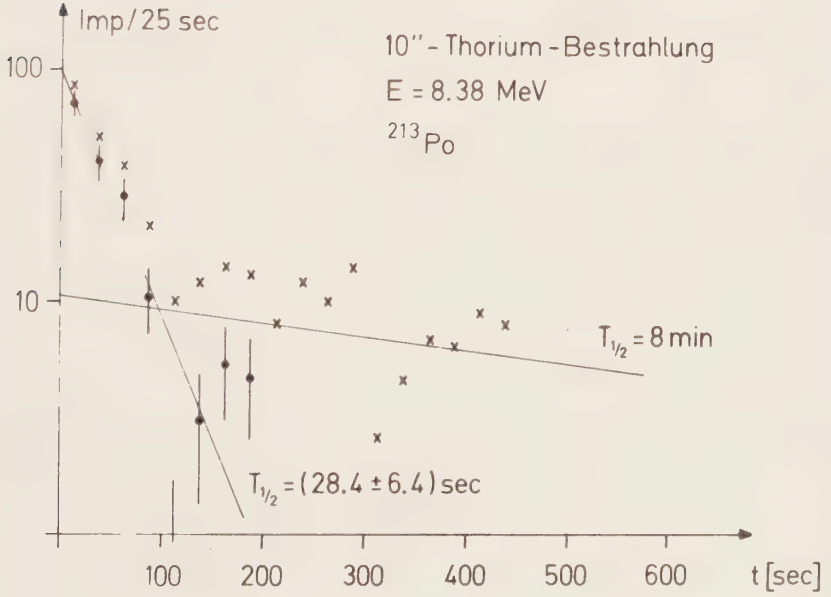


Abb. 36 Zerfall des ^{213}Po aus der ^{226}Th/^{222}Ra - Reihe , 10 sec - Bestrahlung .

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	10 sec Halbwertzeit des Peaks	10 sec LSQ-Fit	1 min Halbwertzeit des Peaks	1 min LSQ-Fit	10 min Halbwertzeit des Peaks	10 min LSQ-Fit	Ursprung
^{225}Th	6.48 6.44 6.50	8 min							
^{221}Ra	6.61	30 sec			(24 ± 11) sec	1.208			
	6.76				8 min				
	6.67				(2.6 ± 0.5) min				^{211}Bi
^{217}Rn	7.74	540 µsec	(34.8 ± 5.8) sec	1.29	(32.2 ± 3.7) sec	0.92			
			8 min		8 min				
			31 min		31 min				^{214}Po
^{213}Po	8.38	4.2 µsec	(28.4 ± 6.4) sec	1.14	(28.7 ± 5.8) sec	0.77	(41.3 ± 30) sec	0.77	
			8 min		8 min		(9.07 ± 1.6) min		
			46 min		46 min		46 min		^{213}Bi
^{213}Bi	Beta	46 min							
^{209}Pb	Beta	3.3 h							
^{209}Bi		stabil							

Tabelle 6 ^{225}Th/^{221}Ra - Reihe Reaktion ^{232}Th (p, p 7n)^{225}Th und ^{232}Th(p, 3p 9n)^{221}Ra

Erläuterung siehe Text und Tabelle 4

sich um das Nuklid ^{213}Bi , das mit einer Halbwertzeit $\tau_{1/2}$ = 46 min durch Beta - Emission zerfällt . Der Ursprung des ^{213}Bi liegt im ^{221}Fr bzw. ^{217}At . Die Alpha - Peaks dieser beiden Nuklide lassen sich in den Kurzzeitspektren (Abb. 26 bis 28) nur undeutlich erkennen , ihre Intensität ist sehr niedrig . Eine direkte Untersuchung dieser Peaks ist daher nicht möglich . Diese 46 min - Komponente ^{213}Bi ist auch bei den Rechnungen für die 10 sec - (Abb. 36) und 1 min - Bestrahlungen (Abb. 35) berücksichtigt worden . In die Abb. 36 ist sie jedoch aus Intensitätsgründen nicht eingezeichnet .

Die Halbwertzeit der zweiten Langzeitkomponenten , die dem ^{225}Th zugeschrieben wird , ist aus der 10 min - Bestrahlung zu $\tau_{1/2}$ = 9.07 $\pm$ 1.65 min ermittelt worden . Damit dürfte ihre Zugehörigkeit zum ^{225}Th erwiesen sein .

Der gewichtete Mittelwert für die Halbwertzeit des ^{221}Ra beträgt $\tau_{1/2}$ = 30.8 $\pm$ 2.5 sec , eine gute Übereinstimmung mit dem Literaturwert [30), 32)] von 30 sec .

3. 3. 4. Die ^{226}Ac - Reihe

Das ^{226}Ac zerfällt zu 80 % über Beta - Emission zum ^{226}Th , zu 20 % durch Elektroneneinfang zum ^{226}Ra . Eine Alpha - Komponente sehr geringer Intensität wird vermutet [30), 32)] . Das ^{226}Ra mit einer Halbwertzeit $\tau_{1/2}$ = 1600 a kann nicht weiter beobachtet werden . Das ^{226}Ac entsteht bei den Langzeitbestrahlungen . Seine Halbwertzeit kann aus dem Zerfall der Nuklide ^{226}Th , ^{222}Ra , ^{218}Rn und ^{214}Po zu $\tau_{1/2}$ = 28.6 $\pm$ 0.5 h bestimmt werden . Das ist eine gute Übereinstimmung mit dem Literaturwert [30), 32)] von 29 h . Für das ^{214}Po ist die zeitliche Abnahme der Aktivität in Abb. 37 aufgetragen , die Zerfallsdaten dieser Reihe sind in Tabelle 7 zusammengestellt .

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Ursprung
^{226}Ac	Beta	29 h			
↓					
^{226}Th	6.34	31 min	(27.3 ± 3.9) h	1.00	
	6.23		3.64 d		^{224}Ra
			10.0 d		^{225}Ac
^{222}Ra	6.56	38 sec	(28.9 ± 0.9) h	0.67	
↓					
^{218}Rn	7.112	30 msec	(28.0 ± 0.9) h	0.96	
			10.0 d		^{225}Ac
^{214}Po	7.69	162 µsec	(28.8 ± 0.7) h	0.43	
↓					
^{210}Pb	Beta	22 a			
↓					
^{210}Bi	Beta	5 d			
↓					
^{210}Po	5.31	138.4 d			
↓					
^{206}Pb		stabil			

Tabelle 7 ^{226}Ac - Reihe Reaktion ^{232}Th(p, 2p 5n)^{226}Ac

3. 3. 5. Die ^{225}Ac - Reihe

Einen Überblick über die ^{225}Ac - Reihe gibt die Tabelle 8 . Als Halbwertzeit ergibt sich aus den Zerfallskurven der Nuklide ^{225}Ac , ^{221}Fr, ^{217}At und ^{213}Bi der Wert $\tau_{1/2} = 10.3 \pm 0.6$ d , wieder in guter Übereinstimmung mit dem Literaturwert von 10.0 d [30), 32)]. Die Abb. 38 zeigt die Abnahme der Aktivität des Nuklids ^{213}Po in Abhängigkeit von der Zeit . Die Analyse dieser Reihe bot wie die der ^{226}Ac - Reihe keine Komplikationen .

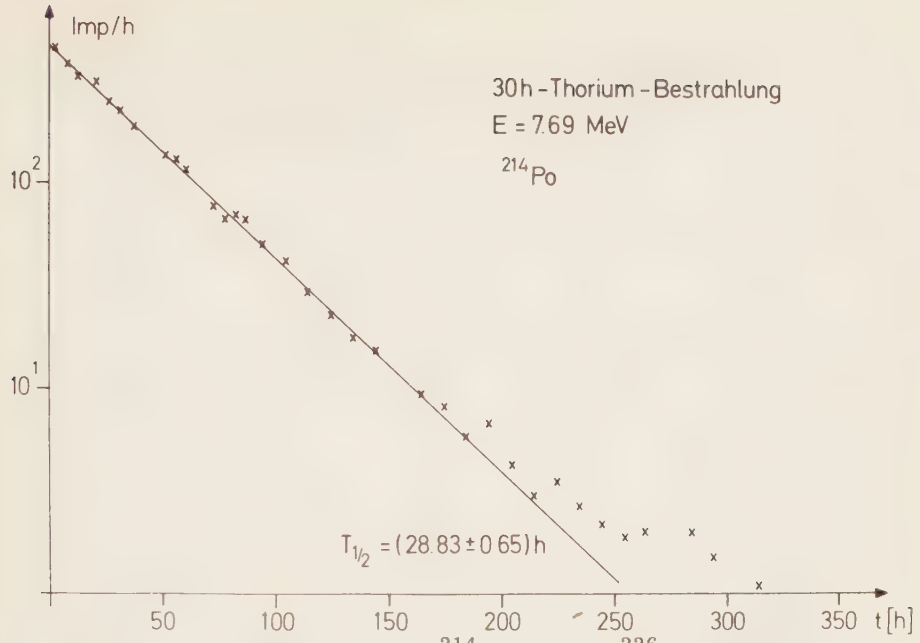


Abb. 37 Zerfallskurve des ^{214}Po aus der ^{226}Ac - Reihe.

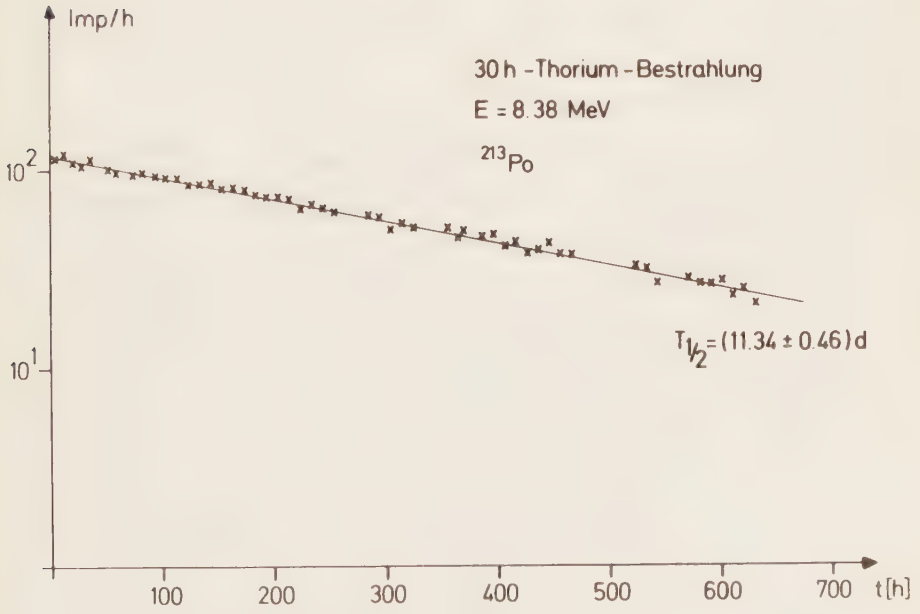


Abb. 38 Zerfallskurve des ^{213}Po aus der ^{225}Ac - Reihe.

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Ursprung
^{225}Ac	5.83	10.0 d	(10.1 ± 0.6) d	0.47	
↓	5.79		15 h		^{211}Rn
^{221}Fr	6.34	4.8 min	(8.8 ± 0.5) d	0.93	
↓	6.13		29 h		^{226}Ac
^{217}At	7.07	30 msec	(10.6 ± 0.6) d	0.49	
↓			29 h		^{226}Ac
^{213}Bi	Beta	46 min			
↓					
^{213}Po	8.38	4.2 µsec	(11.3 ± 0.5) d	0.32	
↓					
^{209}Pb	Beta	3.3 h			
↓					
^{209}Bi		stabil			

Tabelle 8 ^{225}Ac - Reihe Reaktion $^{232}Th(p, 2p\,6n)^{225}Ac$

3. 3. 6. Die ^{223}Ac - Reihe

Die Existenz dieser Reihe kann eindeutig nachgewiesen werden durch die Zerfallskurven des ^{219}Fr und ^{215}At für die drei Kurzzeitbestrahlungen. Die Abb. 39, 40 und 41 zeigen die betreffenden Zerfallskurven für das Nuklid ^{215}At, Tabelle 9 gibt die Zerfallsdaten der Reihe an. Unter Abschnitt 3. 3. sind bereits Einzelheiten über diese Kette berichtet worden. Der gewichtete Mittelwert für die Halbwertzeit des Nuklids ^{223}Ac beträgt $\tau_{1/2} = 2.12 \pm 0.05$ min.

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	10 sec		1 min		10 min		Ursprung
			Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	
^{223}Ac	6.65 6.66 6.56	2.2 min							
↓									
^{219}Fr	7.30	20 msec	(1.92 ± 0.16) min	0.69	(2.07 ± 0.11) min	0.94	(2.13 ± 0.14) min	1.13	
↓									
^{215}At	8.00	0.1 msec	(1.99 ± 0.16) min	0.73	(2.13 ± 0.11) min	1.20	(2.32 ± 0.12) min	0.99	
↓									
^{211}Bi	6.62 6.28	2.15 min							
↓									
^{207}Tl	Beta	4.8 min							
↓									
^{207}Pb		stabil							

Tabelle 9 ^{223}Ac - Reihe Reaktion $^{232}Th(p, 2p\ 8n)^{223}Ac$

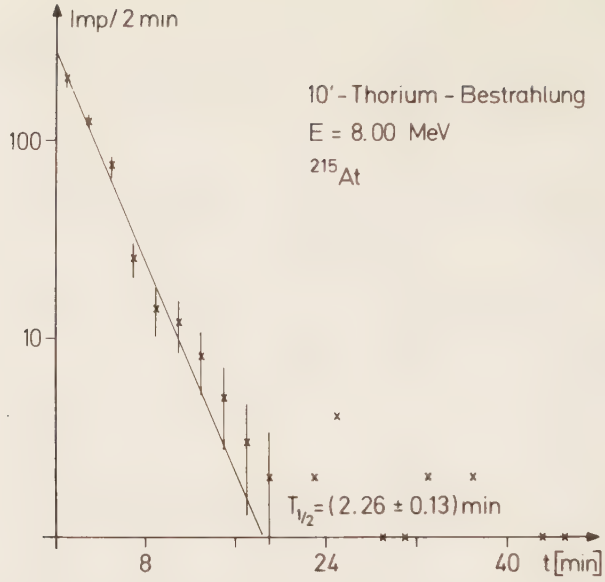


Abb. 39 Zerfallskurve des ^{215}At aus der ^{223}Ac - Reihe , 10 min - Bestrahlung

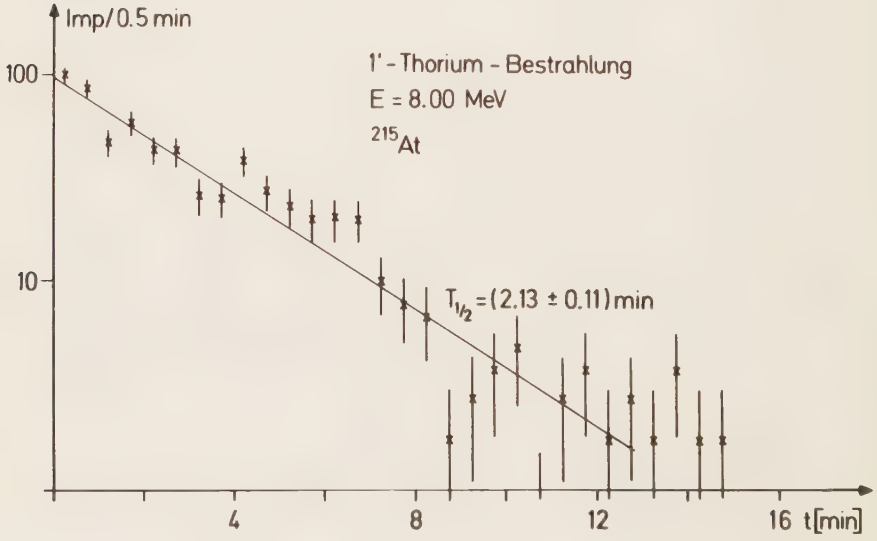


Abb. 40 Zerfall des ^{215}At aus der ^{223}Ac - Reihe , 1 min - Bestrahlung .

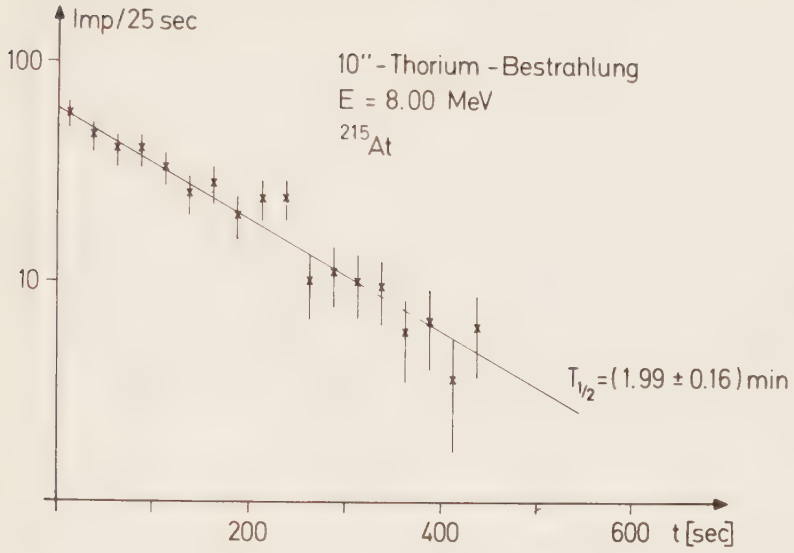


Abb. 41 Zerfallskurve des ^{215}At aus der ^{223}Ac - Reihe , 10 sec - Bestrahlung .

3. 3. 7. Die ^{222m}Ac - Reihe

Die Untersuchung der Peaks bei den Alpha - Energien E_α = 8.78 MeV und E_α = 7.85 MeV , die bei den Kurzzeitbestrahlungen gefunden werden , bringt eine Überraschung .

Nach der Nuklidkarte[30)] kommen für den 8.78 MeV - Peak zwei Nuklide infrage , und zwar das ^{212}Po und das ^{214}At . Bei den Langzeitbestrahlungen entsteht das ^{212}Po aus dem ^{224}Ra , welches mit einer Halbwertzeit von 3.64 d zerfällt . Bei den Kurzzeitbestrahlungen kann das ^{224}Ra nicht Ursache der Aktivität des Peaks bei 8.78 MeV sein . Auch das Nuklid ^{220}Rn mit 55.6 sec Halbwertzeit kann nicht Ursprung dieser 8.78 MeV

Aktivität sein , da das ^{212}Pb , ein weiteres Glied dieser Kette, welches über Beta - Emission zum ^{212}Bi und weiter zum ^{212}Po zerfällt , eine Eigenhalbwertzeit von 10. 6 h hat .

Eine andere Entstehungsmöglichkeit für das ^{212}Po wäre die Zerfallsreihe

$$^{220}Fr \xrightarrow[27\ s]{} {}^{216}At \xrightarrow[0.3ms]{} {}^{212}Bi \xrightarrow[60.6\ m]{} {}^{212}Po .$$

Das langlebigste Nuklid dieser Kette ist das ^{212}Bi mit $\tau_{1/2}$ = 60. 6 min. Diese Komponente ist bei der Untersuchung des Zerfalls des 8. 78 MeV-Peaks tatsächlich festgestellt worden (Abb. 42). Neben dieser Langzeitkomponenten existiert jedoch noch ein Kurzzeitanteil von etwa 1 min Halbwertzeit , der bei den Bestrahlungen von 1 min oder 10 sec Dauer besonders deutlich sichtbar wird (Abb. 43 und 45) . Die Reihe

$$^{224}Th \xrightarrow[1.05\ s]{} {}^{220}Ra \xrightarrow[23\ ms]{} {}^{216}Rn \xrightarrow[45\ \mu s]{} {}^{212}Po$$

weist kein Nuklid auf , das eine längere Halbertzeit als 1 sec hat , diese Reihe muß also ebenfalls als Erklärung für die 1 min - Komponente des 8. 78 MeV - Peaks ausgeschlossen werden .

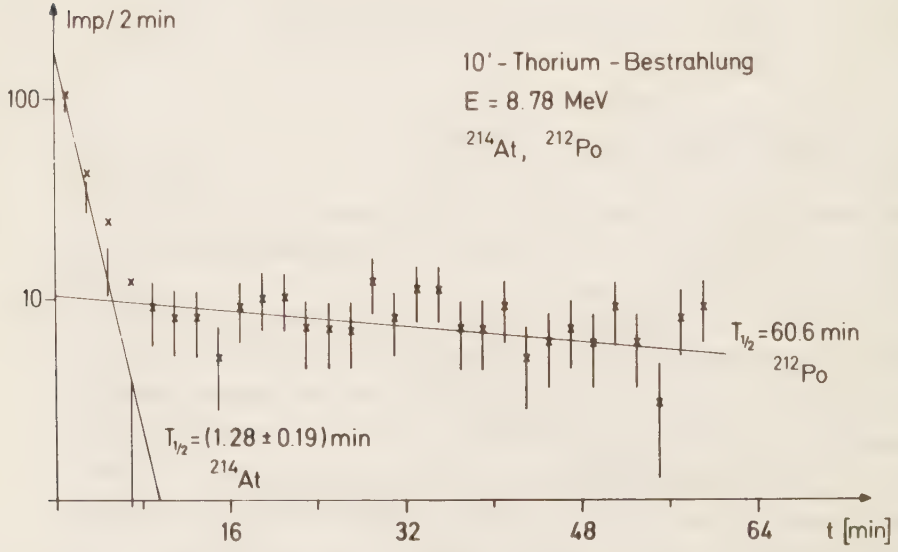


Abb. 42 Zerfall des Alpha - Peaks 8. 78 MeV , 10 min - Bestrahlung .

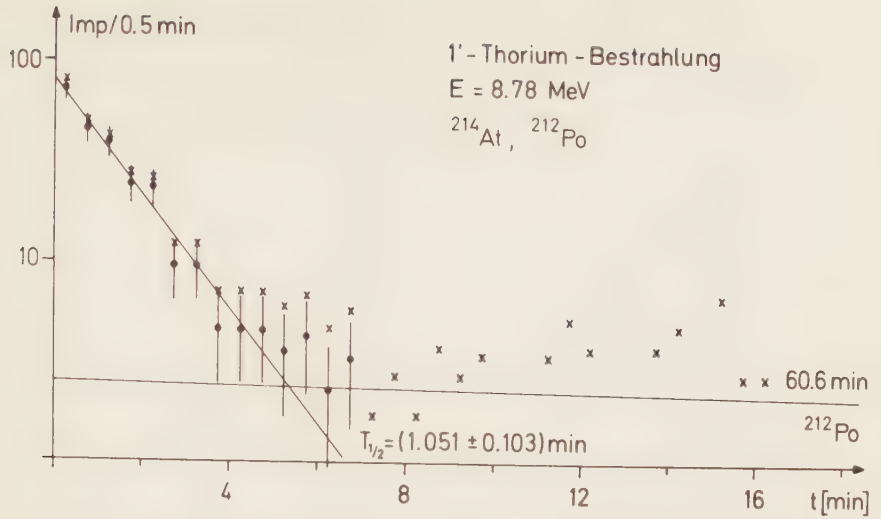


Abb. 43 Zerfall des Alpha - Peaks 8.78 MeV , 1 min Bestrahlung .

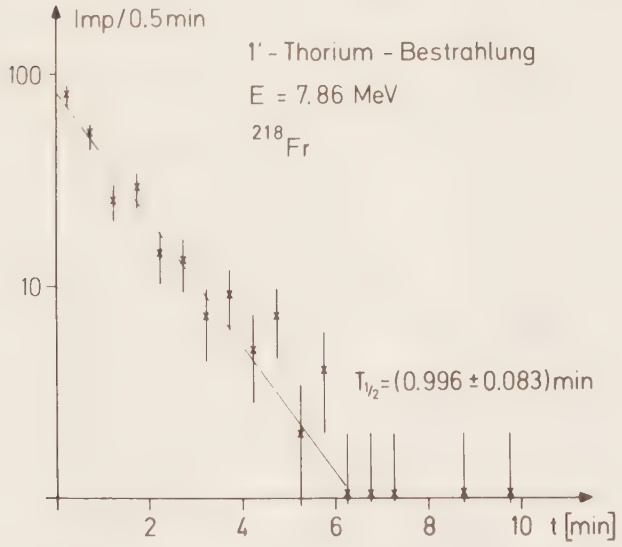


Abb. 44 Zerfall des Alpha - Peaks 7.86 MeV , 1 min Bestrahlung .

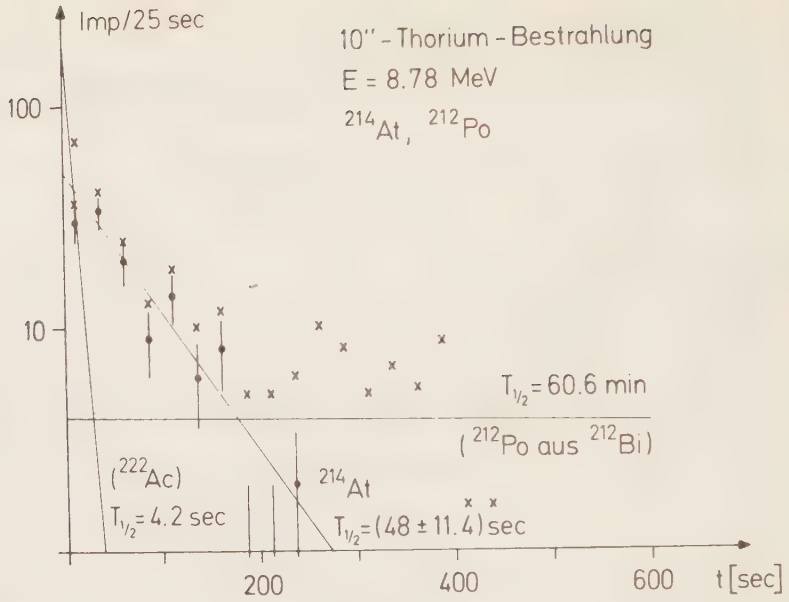


Abb. 45 Zerfall des Alpha - Peaks 8.78 MeV , 10 sec Bestrahlung .

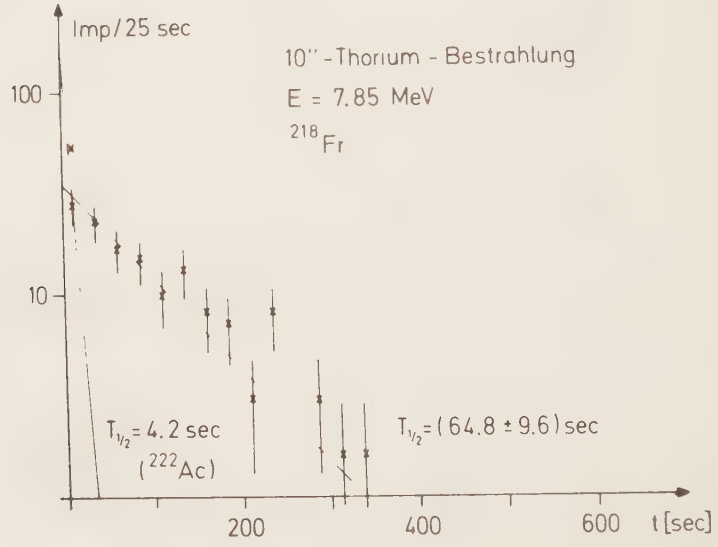


Abb. 46 Zerfall des Alpha - Peaks 7.85 MeV , 10 sec - Bestrahlung .

Es muß nun also untersucht werden, ob die Aktivität des 8.78 MeV-Peaks dem ^{214}At zugeordnet werden kann. Erstes Glied einer in das ^{214}At führenden Reihe könnte das ^{226}Pa sein mit einer Halbwertzeit $\tau_{1/2}$ = 1.8 min. Das LSQ-Programm verbessert den Näherungswert von 1.8 min jedoch auf 1 min. Das ^{226}Pa ist also aufgrund seiner Halbwertzeit als Ursprung der Reihe auszuschließen. Eine weitere Begründung für den Ausschluß des ^{226}Pa ist die Tatsache, daß weder bei 6.86 MeV, der Alpha-Energie des ^{226}Pa noch bei 7.00 MeV, der Alpha-Energie des ^{222}Ac ein Peak im Spektrum zu erkennen ist. Der 7.86 MeV - Peak indessen kann dem folgenden Glied dieser angenommenen Reihe, dem ^{218}Fr zugeordnet werden.

Wie aus den Zerfallskurven dieser beiden Peaks (7.86 MeV und 8.78 MeV) für die drei Kurzzeitbestrahlungen hervorgeht (Abb. 42 bis 46), weisen beide Peaks die gleiche Halbwertzeit von etwa 62 sec auf, dh. sie können als Mutter-Tochter - Abhängigkeit betrachtet werden. Neben der 60.6 min - Komponenten des 8.78 MeV Peaks, die bereits durch das Nuklid ^{212}Po aus dem ^{212}Bi erklärt ist, kann man bei der 10 sec-Bestrahlung beider Peaks (Abb. 45 und 46) eine sehr kurzlebige Komponente erkennen, für die der Wert 4.2 sec bei der Programmrechnung eine gute Anpassung ergibt. Diese 4.2 sec - Komponente ist dem ^{222}Ac zuzuordnen.

Ein möglicher Schluß ist nun, daß die 62 sec - Aktivität einem bisher unbekannten Isomer des ^{222}Ac zuzuschreiben ist. Die betreffende Alpha-Aktivität des Isomers kann im Bereich zwischen 6.0 und 6.8 MeV vermutet werden, denn es gibt hier eine Vielzahl von Peaks, deren Halbwertzeiten sich wegen ihrer Komplexität schwer bestimmen lassen. Es besteht durchaus die Möglichkeit, daß hier eine 62 sec - Komponente enthalten ist.

Eine weitere Aussage ließ sich zu den hier beschriebenen Problemen erst machen, als Eskola[34)] Ergebnisse veröffentlichte, die er beim Beschuß von Blei mit ^{18}O-Ionen erzielte (siehe auch Ghiorso et al.[35)]).

Bei der Untersuchung der 7.86 MeV-Linie des ^{218}Fr fand Eskola eine 66 sec - Aktivität, die er einem Isomer des ^{222}Ac zuschrieb. Durch Korrelationsmessungen zwischen Alpha-Partikeln im Gebiet von 6.5 bis 7.0 MeV mit dem 7.86 MeV-Peak des ^{218}Fr innerhalb von 50 msec konnte Eskola etwa 75 % der Intensität des vermuteten ^{222m}Ac im Gebiet zwischen 6.71 und 6.90 MeV feststellen.

Aufgrund dieser Ergebnisse Eskolas ist der im Spektrum der Abb. 26 bis 28 erkennbare Alpha-Peak bei 6.76 MeV eingehender untersucht worden. Deutlich erkennbar ist aus den Abb. 26 bis 28 , daß seine Intensität nicht allein vom ^{225}Th (18 % der Gesamtaktivität des ^{225}Th mit 8 min Halbwertzeit liegen in diesem Peak) und ^{221}Ra (30 %, $\tau_{1/2}$ = 30 sec) herrühren kann, die ihm nach Angaben der Table of Isotopes[32] zugeschrieben worden sind. Mindestens eine weitere Komponente muß in diesem Peak enthalten sein. Für die 1 min- und 10 sec-Bestrahlungen ist daher der Zerfall des Peaks 6.76 MeV mit den Halbwertzeiten 8 min, 1 min und 30 sec untersucht worden. Das verwendete Programm kann für die drei eingegebenen Halbwertzeiten wegen zu geringer Intensität bei zu wenig Meßpunkten und außerdem zu geringen Unterschieds der beiden Kurzzeitkomponenten nur noch eine Anpassung für fest eingegebene Daten ermitteln. Trotzdem ist das Ergebnis befriedigend. Die Existenz einer 1 min-Aktivität in diesem Peak ist wahrscheinlich. Die Abb. 47 und 48 zeigen den zeitlichen Verlauf der Abnahme der Intensität des Peaks 6.76 MeV mit den eingezeichneten Ausgleichsgeraden. Tabelle 10 gibt die Zerfallsdaten der gesamten Reihe wieder. Es ist auch für beide Bestrahlungszeiten eine Programmrechnung mit nur zwei eingegebenen Halbwertzeiten , nämlich 30 sec und 8 min durchgeführt worden. Für die kurze Halbwertzeit wird jeweils ein Wert von etwa 50 $\pm$ 10 sec ermittelt.

Die Schlußfolgerung lautet also : Es existiert ein Isomer des ^{222}Ac, das mit einer Halbwertzeit $\tau_{1/2}$ = 62 $\pm$ 4 sec durch Alpha-Zerfall im Bereich von 6.75 MeV in das ^{218}Fr übergeht. Es kann jedoch

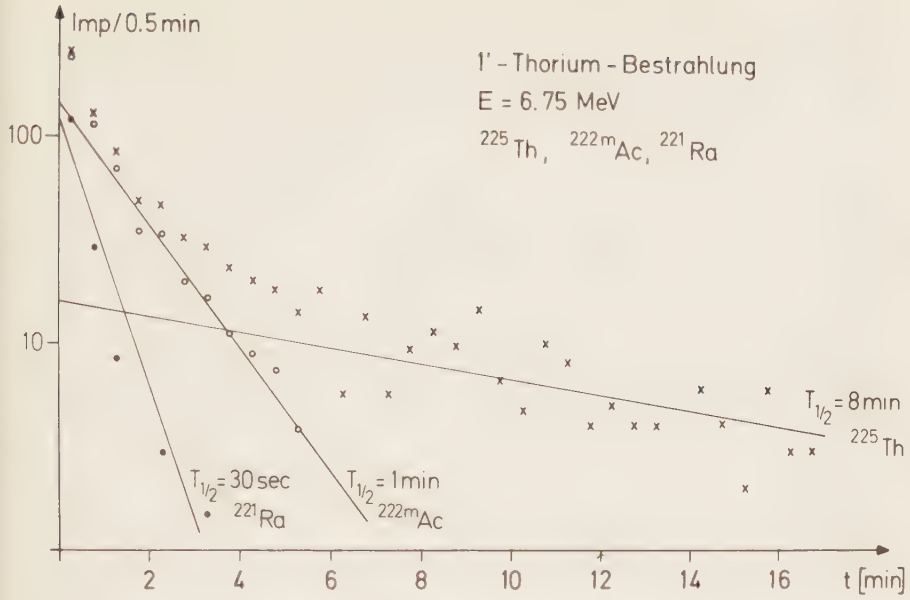


Abb. 47 Zerfall des Alpha-Peaks 6.75 MeV , 1 min - Bestrahlung.

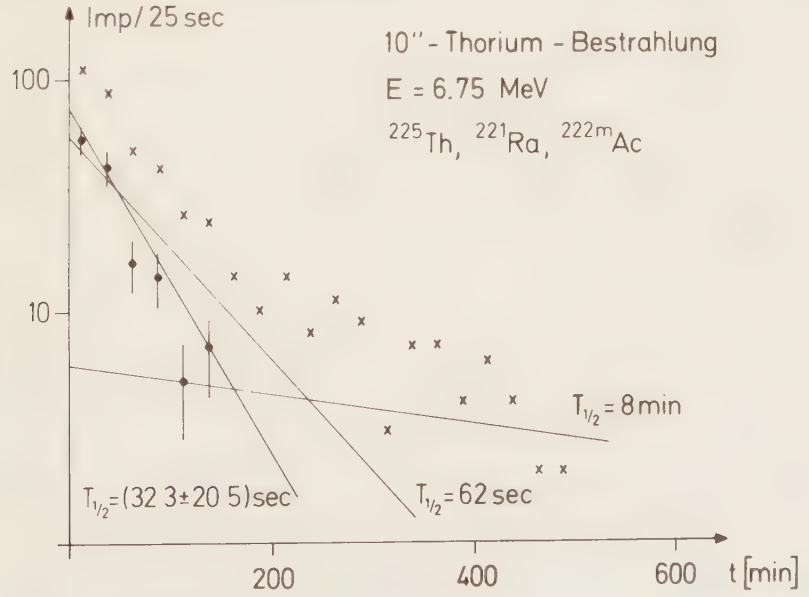


Abb. 48 Zerfall des Alpha-Peaks 6.75 MeV , 10 sec - Bestrahlung.

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	10 sec		1 min		10 min		Ursprung
			Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	
^{222m}Ac	6.75	62 sec	(32.3 ± 20) sec	0.83	30 sec	0.99			^{221}Ra
			63 sec		60 sec				
			8 min		8 min				^{225}Th
^{222}Ac	7.00	4.2 sec							
^{218}Fr	7.85	5 msec	(64.8 ± 9.6) sec	1.01	(59.8 ± 5) sec	0.85			
			4.2 sec						
^{214}At	8.78	2 µsec	(48 ± 11.4) sec	1.07	(63.1 ± 6.2) sec	0.83	(76.7 ± 11.5) sec	0.74	
			4.2 sec						
			60.6 min		60.6 min		60.6 min		^{212}Po
^{210}Bi	Beta	5 d							
^{210}Po	5.31	138.4 d							
^{206}Pb		stabil							

Tabelle 10 ^{222m}Ac - Reihe Reaktion ^{232}Th (p, 2p 9n) ^{222}Ac

Erläuterung siehe Text und Tabelle 4 .

nicht entschieden werden, welches der beiden Isomere des ^{222}Ac, das hier gefundene mit 62 sec Halbwertzeit oder das schon früher bekannte mit 4.2 sec Halbwertzeit , dem Grundzustand zugeordnet werden kann.

3. 3. 8. Die ^{224}Ra-Reihe

Auf die ^{224}Ra-Reihe braucht nicht näher eingegangen zu werden, da ihre Analyse keine Probleme bietet. In Abb. 49 ist der Zerfall des ^{212}Po-Peaks graphisch dargestellt. Die 1.91 a - Komponente stellt den im Targetmaterial enthaltenen Anteil ^{228}Th dar, der bei dieser Messung berücksichtigt werden muß. In Tabelle 11 werden die wesentlichsten Daten dieser Zerfallsreihe aufgeführt.

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Ursprung
^{224}Ra	5.68 5.45	3.64 d			
↓					
^{220}Rn	6.29	55.6 sec	(3.47 ± 1.51) d	0.58	
			29 h		^{226}Ac
			10 d		^{225}Ac
			18.72 d		^{227}Th
↓					
^{216}Po	6.78	0.15 sec	(3.32 ± 0.20) d	0.40	
			18.72 d		^{227}Th
↓					
^{212}Pb	Beta	10.6 h			
↓					
^{212}Bi	Beta	60.6 min			
↓					
^{212}Po	8.78	0.3 usec	(3.46 ± 0.12) d	0.49	
			1.91 a		^{228}Th
↓					
^{208}Pb		stabil			

Tabelle 11 ^{224}Ra-Reihe Reaktion ^{232}Th (p, 3p 6n) ^{224}Ra

Erläuterung siehe Text und Tabelle 4

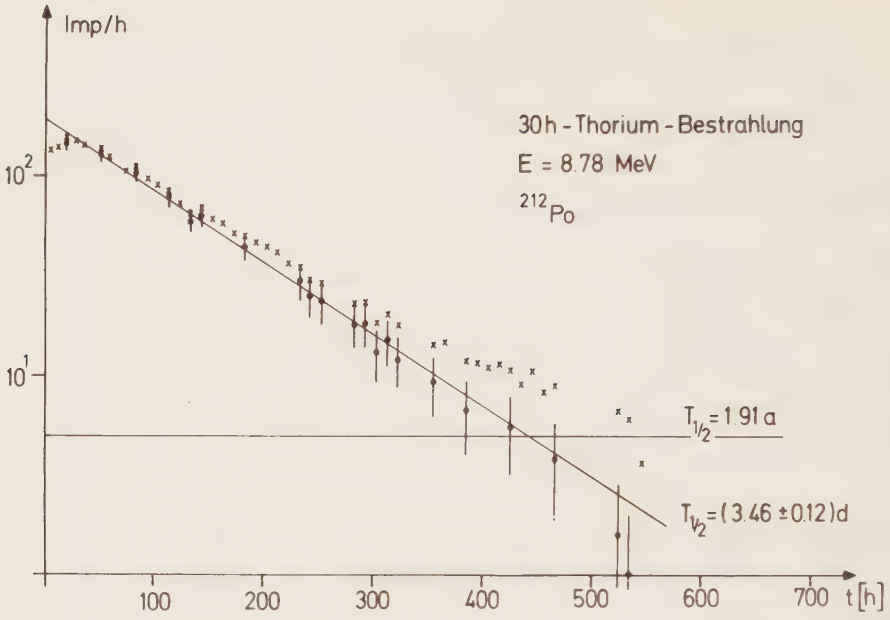


Abb. 49 Zerfallskurve des ^{212}Po aus der ^{224}Ra - Reihe .

3. 3. 9. Die ^{211}Rn - Reihe

Die Bezeichnung „ ^{211}Rn - Reihe " ist nicht ganz zutreffend , da das Nuklid ^{211}Rn wahrscheinlich nicht Ursprung , sondern ein Glied inmitten der Reihe ist . Beobachtet werden kann von der gesamten Reihe nur der Peak bei der Alpha - Energie E_α = 7. 45 MeV , der dem ^{211}Po zugeschrieben wird.

Seine Entstehung läßt sich bei den Langzeitbestrahlungen nur erklären als Zerfallsprodukt des ^{211}At bzw. ^{211}Rn . Eine grobe Untersuchung des Zerfalls dieses Peaks läßt eine Langzeitkomponente erkennen , die als Kontamination durch den Peak E_α = 7. 38 MeV , ^{215}Po aus der 18. 72 d - Reihe des ^{227}Th zu erklären ist sowie einer Kurzzeitkomponenten , für die das LSQ - Programm den Wert $T_{1/2}$ = 13. 15 ± 0. 43 h errechnet . Es besteht die Wahrscheinlichkeit , daß diese Halbwertzeit

das Resultat aus der Kombination 7.2 h für ^{211}At und 15 h für ^{211}Rn ist. Bei der Zerfallsuntersuchung des Peaks ist zu beachten, daß zwischen Bestrahlungsende und Zeitpunkt des Meßbeginns bereits etwa 14 h vergangen sind, was zwei Halbwertzeiten des ^{211}At entspricht. Die 7.2 h - Komponente ist in ihrer Intensität so niedrig, daß sich in der Zerfallskurve die beiden Komponenten nicht mehr eindeutig trennen lassen. Der Versuch, im Programm beide Komponenten als Variable berechnen zu lassen, liefert die Halbwertzeiten $\tau_{1/2}$ = 6.9 ± 2.9 h für das Nuklid ^{211}At und $\tau_{1/2}$ = 17.8 ± 2.1 h für das Nuklid ^{211}Rn. Beide ermittelten Halbwertzeiten sind also mit einem großen Fehler belastet. Setzt man nun voraus, daß die 7.2 h - Komponente des ^{211}At auf jeden Fall vorhanden ist und betrachtet man sie im Programm als Konstante, so ergibt sich für die zweite Halbwertzeit der Wert $\tau_{1/2}$ = 16.0 ± 1.4 h.

Das Programm liefert als weitere Aussage auch die Zählrate beider Nuklide zu Beginn der Messung. Sie beträgt für die 7.2 h - Komponente

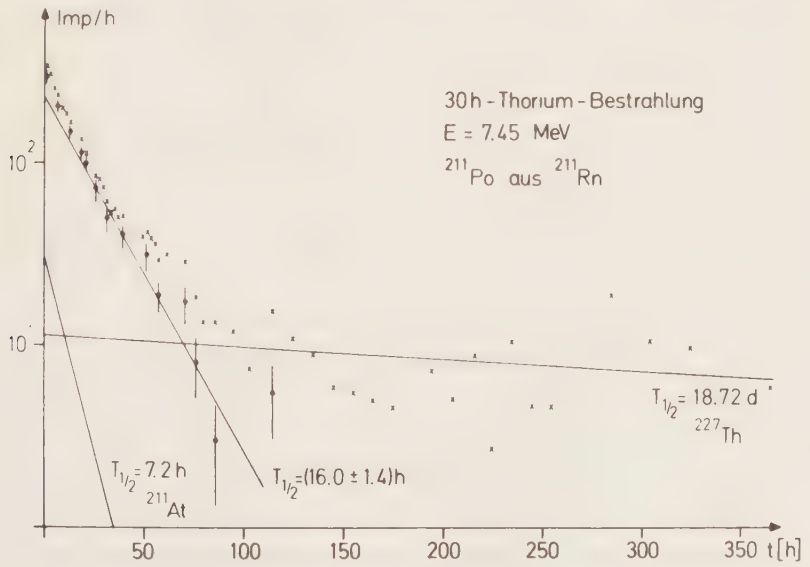


Abb. 50 Zerfallskurve des Alpha - Peaks E_α = 7.45 MeV. Erläuterung siehe Text.

Nuklid	α-Energie in MeV	Halbwertzeit des Nuklids	Halbwertzeit des Peaks	LSQ-Fit	Ursprung
^{219}Th	?	?			
↓					
^{215}Ra	8.70	1.6 msec			
↓					
^{211}Rn	5.79 5.85	15 h			
↓	Beta +				
^{211}At	5.87	7.2 h			
↑ ↓	Beta +				
^{215}Fr	9.4	1 msec			
↑					
^{219}Ac	8.66	sehr kurz			
^{211}Po	7.45	0.52 sec	(13.2 ± 0.4) h	1.16	
↓			18.72 d		^{227}Th
			(6.9 ± 2.9) h	1.13	
			(17.8 ± 2.1) h		
			18.72 d		^{227}Th
			(16.0 ± 1.4) h	1.36	
			7.2 h 18.72 d		^{227}Th
^{207}Pb		stabil			

Tabelle 12 ^{211}Rn - Reihe Erläuterung im Text und Tabelle 4 .

0.50 ± 0.20 Imp/min und für die 15 h - Komponente 3.81 ± 0.62 Imp/min .

Die Folgerung aus diesen Daten , die auch in Tabelle 12 zusammengestellt sind , lautet : Sowohl das Nuklid ^{211}Rn als auch das Nuklid ^{211}At sind unabhängig voneinander Ursache des Peaks bei E_{α} = 7.45 MeV.

In Abb. 50 ist die zeitliche Abhängigkeit der Impulsrate des Peaks E_{α} = 7.45 MeV graphisch aufgetragen .

Es ist allerdings nicht anzunehmen , daß das ^{211}Rn bzw. ^{211}At beim Beschuß von Thorium-Targets mit 600 MeV - Protonen direkt erzeugt worden sind . Wahrscheinlicher ist , daß primär ^{219}Th oder ^{215}Ra entstanden sind bzw. ^{219}Ac oder ^{215}Fr , welche sehr schnell in das Nuklid ^{211}Rn bzw. ^{211}At zerfallen sind . Deshalb muß hier von einer kumulativen Bildungsart des ^{211}Rn bzw. ^{211}At gesprochen werden.

Der Alpha-Peak bei E_{α} = 7.45 MeV , der bei den Langzeitbestrahlungen dem ^{211}Po zugeordnet wird , findet sich auch bei den Kurzzeitbestrahlungen von 10 sec , 1 min und 10 min Dauer . Es ist dort jedoch nicht möglich,seine Halbwertzeit zu bestimmen , bei den verwendeten kurzen Meßzeiten ist ein Abfall der Intensität nicht erkennbar . Für eine Herkunft des Peaks aus einem beliebigen Glied der ^{223}Th - Reihe fehlt jeder Anhaltspunkt . Überraschend ist seine relativ hohe Intensität , die in der gleichen Größenordnung wie die des ^{218}Fr oder ^{214}At/^{212}Po liegt (Abb. 26 bis 28) . Eine Identifizierung dieses Peaks ist bis jetzt nicht gelungen .

3. 4. Zusammenfassung

Die Abb. 51 zeigt einen Ausschnitt aus der Nuklidkarte . Die stark umrandeten Nuklide sind als primär gebildet identifiziert worden . Ein Sonderfall , wie unter Abschnitt 3. 3. 9. ausführlich beschrieben , ist das ^{211}Rn bzw. ^{211}At. Nicht gefunden werden konnte das Nuklid ^{224}Ac . Wahrscheinlich ist das auf die Tatsache einer fehlenden 1 oder 2 h - Bestrahlung mit sofort beginnender Messung zurückzuführen . Die Halbwertzeit des ^{224}Ac von 2.9 h ist einerseits zu lang , als daß dieses Nuklid bei den Kurzzeitbestrahlungen in ausreichender Intensität produziert werden könnte , andererseits kann es bei den Langzeitbestrahlungen durch die große Verzögerung zwischen Ende der Bestrahlung und Meßbeginn bereits soweit abgeklungen sein , daß es nur noch einen geringfügi-

gen Anteil zum Gesamtspektrum beiträgt und dadurch nicht mehr identifiziert werden kann.

Außerdem fehlt das Nuklid ^{223}Ra. Eine Untersuchung der ^{227}Th-Reihe gab keinen Anhaltspunkt für eine gleichzeitig vorhandene 11.43 d - Aktivität.

Die Produktion von ^{221}Fr bzw. ^{220}Fr kann aufgrund des Vorhandenseins der 46 min-Aktivität des Nuklids ^{213}Bi bzw. der 60.6 min-Aktivität des Nuklids ^{212}Bi vermutet werden. Die Halbwertzeiten aller anderen Nuklide in diesem Gebiet sind zu kurz oder zu lang, als daß diese bei den ausgeführten Bestrahlungsreihen produziert bzw. nachgewiesen werden könnten.

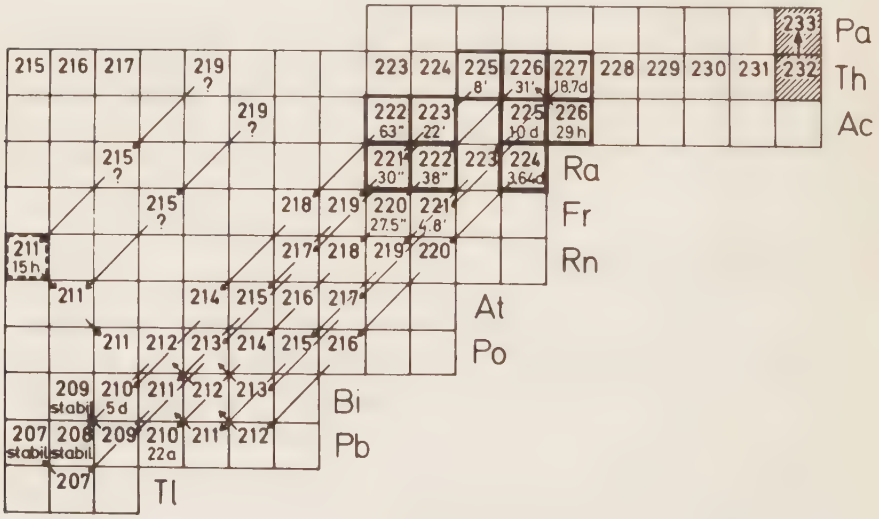


Abb. 51 Ausschnitt aus der Nuklidkarte. Die stark umrandeten Nuklide sind als Ausgangsprodukte der dargestellten Zerfallsreihen bei Bestrahlung von ^{232}Th mit 600 MeV - Protonen gefunden worden.

4. Bestimmung der Wirkungsquerschnitte

4. 1. Mathematische Herleitung der Formel für die Berechnung von σ aus den Meßwerten

Zur Herleitung der Formel für den Wirkungsquerschnitt σ werde eine Reaktion $A + x \rightarrow B + y$ betrachtet. Wie schon in der Einleitung erwähnt, ist A das Targetnuklid, welches von einem Teilchenstrahl x beschossen wird und B das bei dieser Reaktion neben einer Anzahl kleiner Teilchen entstehende neue Nuklid. Die Bildungsrate des Nuklids B ist nach Gleichung (2) gegeben durch den Ausdruck

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A \qquad (2)$$

wobei σ den Wirkungsquerschnitt in cm^2, Φ die Flußdichte der Geschosse in Teilchen/sec$\cdot cm^2$ und N_A bzw. N_B die Zahl der Atome des Nuklids A bzw. B bedeuten. Vorausgesetzt wird, daß die Flächenbelegung im Target konstant ist.

Berücksichtigt muß werden, daß B radioaktiv ist, dh. ein Teil der gerade gebildeten Atome des Nuklids B sofort wieder zerfällt. Die Zerfallsrate wird beschrieben durch die Gleichung

$$-\frac{dN_B}{dt} = \lambda_B \cdot N_B \qquad (6)$$

Daraus ergibt sich die Nettobildungsrate zu

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A - \lambda_B \cdot N_B \qquad (7)$$

Bei dieser Gleichung (7) handelt es sich um eine inhomogene Differentialgleichung (Dgl). Die Lösung einer inhomogenen Dgl. erhält man aus der allgemeinen Lösung der homogenen Dgl. plus einer speziellen Lösung der inhomogenen Dgl.

Für die homogene Differentialgleichung

$$\frac{1}{\lambda_B} \cdot \frac{dN_B}{dt} + N_B = 0 \qquad (8)$$

führt der Lösungsansatz

$$N_B = N_0 \cdot e^{-\varkappa \cdot t} + K_1 \qquad (9)$$

zu der allgemeinen Lösung

$$N_B = N_0 \cdot e^{-\lambda_B \cdot t} . \qquad (10)$$

Ein spezieller Lösungsansatz für die inhomogene Dgl. (7) ist

$$N_B = K_2 . \qquad (11)$$

Für die Konstante K_2 ergibt sich

$$K_2 = \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot N_A}{\lambda_B} .$$

Somit lautet die Lösung der Gleichung (7)

$$N_B = N_0 \cdot e^{-\lambda_B \cdot t} + \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot N_A}{\lambda_B} \qquad (12)$$

Zu beachten bleibt noch , daß zur Zeit $t = 0$ keine Atome N_B existieren :

$$N_B(t = 0) = 0 = N_0 + \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot N_A}{\lambda_B}$$

$$N_0 = - \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot N_A}{\lambda_B} \qquad (13)$$

Somit ist die Zahl der Atome des radioaktiven Nuklids B nach der

Bestrahlungszeit $t = t_{BZ}$ unter Berücksichtigung des Zerfalls

$$N_B(t = t_{BZ}) = \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot N_A}{\lambda_B} \cdot (1 - e^{-\lambda_B \cdot t_{BZ}}) \qquad (14)$$

Die Zerfallsrate zum Zeitpunkt $t = t_{BZ}$ ist

$$A(t = t_{BZ}) = - \frac{dN_B(t = t_{BZ})}{dt} \quad .$$

Der Wirkungsquerschnitt σ läßt sich also durch die Gleichung

$$\sigma = \frac{A(t - t_{BZ})}{\Phi \cdot N_A \cdot (1 - e^{-\lambda_B \cdot t_{BZ}})} \qquad (15)$$

aus der Zerfallsrate bestimmen. Φ und N_A sind bekannt. Die Zerfallsrate dagegen kann i. a. nicht direkt bei Bestrahlungsende bestimmt werden. Zwar liefert das LSQ-Programm die Zerfallsrate bei Bestrahlungsende, jedoch kann dieser Wert hier nicht verwendet werden, da für die einzelnen Bestrahlungsreihen die Intensität für eine Zeitanalyse nicht ausreicht . Die Zeitanalyse wurde stattdessen mit der aufaddierten Summe aller Einzelbestrahlungen durchgeführt. Deshalb wird hier in einem beliebigen Zeitraum $\Delta t = (t_{BZ} + t_e) - (t_{BZ} + t_a) = t_e - t_a$ (t_a bzw. t_e bedeuten Anfangs- bzw. Endzeitpunkt der Messung nach Bestrahlungsende) unter Geometriebedingungen, die durch den Geometriefaktor η charakterisiert sind, eine Impulszahl Z registriert. Diese Impulszahl Z kann ausgedrückt werden als das Integral über die Zerfallsrate im Zeitraum t :

$$Z = \eta \cdot \int_{t_{BZ}+t_a}^{t_{BZ}+t_e} A \, dt = \eta \cdot \int_{t_{BZ}+t_a}^{t_{BZ}+t_e} - \frac{dN_B(t)}{dt} \, dt$$

$$= \eta \cdot \lambda_B \cdot N_{t=0} \cdot \int_{t_{BZ}+t_a}^{t_{BZ}+t_e} e^{-\lambda_B \cdot t} \, dt$$

$$= \eta \cdot N_{t=0} (e^{-\lambda_B \cdot t_a} - e^{-\lambda_B \cdot t_e}) \cdot e^{-\lambda_B \cdot t_{BZ}} \qquad (16)$$

Aus dieser Gleichung (16) läßt sich der Wert $N_{t=0}$ bestimmen. Dieser entsteht durch Extrapolation

der Zerfallskurve des Nuklids B über den Zeitpunkt des Bestrahlungsendes t_{BZ} hinaus bis zur Zeit t = 0 . Mit seiner Hilfe und der bekannten Zerfallskonstanten λ_B läßt sich die Aktivität A (t) des Radionuklids B zu jedem beliebigen Zeitpunkt t bestimmen . Es gilt also

$$N_{t=0} = \frac{Z}{\eta \cdot (e^{-\lambda_B \cdot t_a} - e^{-\lambda_B \cdot t_e}) \cdot e^{-\lambda_B \cdot t_{BZ}}} \qquad (17)$$

Die Aktivität A (t) zum Zeitpunkt $t = t_{BZ}$ ist daher

$$A(t = t_{BZ}) = \frac{\lambda_B \cdot Z}{\eta \cdot (e^{-\lambda_B \cdot t_a} - e^{-\lambda_B \cdot t_e})} \qquad (18)$$

Geht man mit diesem Ausdruck in die Gleichung (15) ein , so erhält man zur Ermittlung des Wirkungsquerschnitts eine Formel , die nur noch bekannte Größen enthält :

$$\sigma = \frac{\lambda_B \cdot Z}{\eta \cdot \Phi \cdot N_A \cdot (e^{-\lambda_B \cdot t_a} - e^{-\lambda_B \cdot t_e})(1 - e^{-\lambda_B \cdot t_{BZ}})} \qquad (19)$$

4. 2. Ergebnisse der Einzelbestrahlungen und Fehlerbetrachtung

In der Tabelle 13 sind die nach Gleichung (19) aus den Daten der Einzelexperimente bestimmten Wirkungsquerschnitte zusammengestellt . Dabei ist der bei der Ermittlung des Protonenflusses , der Targetdicke , der Zählrate und des Geometriefaktors entstandene Fehler berücksichtigt worden . Einige andere Fehler sind indessen rechnerisch nicht greifbar . So wird z. B. vorausgesetzt , daß das Targetmaterial die Aluminium - Träger - Folie gleichmäßig bedeckt . Über die tatsächliche Flächenbelegung lassen sich jedoch keine Aussagen machen . Dies gilt auch für die zeitlichen Schwankungen des Protonenstrahls. Der für die Monitorreaktionen benutzte Wirkungsquerschnitt beinhaltet ebenfalls einen nicht berücksichtigten Fehler . Schließlich spielen auch

Nuklid	Wirkungsquerschnitt $\bar{\sigma}$ in mbarn für die Bestrahlungsreihen									
	10 sec	1 min	1 min	1 min	10 min	30 h	18 h	18 h	2 h	2 h	2 h
^{221}Ra	10.9 ± 1.5	9.8 ± 1.8	7.8 ± 1.8	13.8 ± 1.9	9.1 ± 6.0						
^{222}Ra		10.5 ± 1.5	9.2 ± 1.4	15.8 ± 2.0							
^{224}Ra						11.3 ± 0.9	5.3 ± 0.2	6.1 ± 0.2	7.6 ± 0.3	5.8 ± 0.2	6.6 ± 0.2
^{222}Ac	6.6 ± 2.8										
^{222m}Ac	5.6 ± 1.2	9.7 ± 2.0	10.9 ± 2.1	18.7 ± 2.2							
^{223}Ac	17.7 ± 2.4	19.6 ± 3.1	17.9 ± 2.8	31.9 ± 3.5	12.5 ± 1.8						
^{225}Ac						15.0 ± 0.5	5.4 ± 0.2	4.4 ± 0.2	6.0 ± 0.3	5.2 ± 0.2	7.3 ± 0.3
^{226}Ac						15.1 ± 0.4	5.2 ± 0.1	4.4 ± 0.2	5.6 ± 0.2	4.4 ± 0.2	6.5 ± 0.2
^{225}Th					7.9 ± 0.9						
^{226}Th					15.5 ± 1.5						
^{227}Th						9.1 ± 0.4		16.1 ± 0.6			
^{211}Rn						13.8 ± 2.5	4.2 ± 0.8	3.0 ± 0.5	4.7 ± 0.8	2.3 ± 0.5	4.5 ± 0.8

Tabelle 13 Experimentell ermittelte Wirkungsquerschnitte der Einzelbestrahlungen

nicht sofort bemerkte apparative Unregelmäßigkeiten eine Rolle. Ein Beispiel dafür läßt sich bei der Betrachtung der Einzelergebnisse in Tabelle 13 erkennen. Die dritte 1 min-Bestrahlung und die 30 h-Bestrahlung zeigen Ergebnisse, die weit höher liegen als die der übrigen Bestrahlungen. Es wird vermutet, daß bei diesen beiden Reihen der Protonenfluß nicht korrekt bestimmt worden ist. Wie erst nach Abklingen der Monitorfolien festgestellt wurde, setzte die Uhr eines für die Monitor-Messungen benutzten Vielkanalanalysators zeitweilig aus. Der aus den bekannten Fehlerquellen ermittelte Fehler ist bei beiden Reihen klein. Eine Verwertung dieser beiden Reihen bei der Ermittlung des gewichteten Mittelwertes für den Wirkungsquerschnitt muß unterbleiben. Die Verluste an Spallationsprodukten durch Rückstoß liegen nach Angaben von Pate und Poskanzer[17] sowie Rechnungen von Jungclas[36] unter 2 %. Sie sind in der Fehlerangabe berücksichtigt.

4. 3. Diskussion der Ergebnisse

In der Tabelle 14 sind die durch gewichtete Mittelwertbildung aus den Einzelergebnissen der Tabelle 13 erhaltenen Wirkungsquerschnitte zusammengestellt. Die dritte Spalte der Tabelle enthält als Vergleich die von Pate und Poskanzer[17] experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte. Die Übereinstimmung der experimentellen Ergebnisse für die längerlebigen Nuklide wie ^{225}Ac, ^{226}Ac, ^{226}Th und ^{227}Th ist gut, zumal wenn man berücksichtigt, daß die beiden Methoden sehr verschieden sind (naßchemisch gegenüber ON-LINE-Messung). Für die anderen Nuklide der Tabelle 14 konnten Pate und Poskanzer keine Wirkungsquerschnitte bestimmen, da sie zu kurzlebig sind, oder wie im Falle von ^{211}Rn (kumulativ) chemisch nur mit Schwierigkeiten erfaßbar sind.

In der vierten Spalte von Tabelle 14 sind die von Stark[20] berechneten Ausbeuten angegeben. Stark bedient sich dabei eines von Stark und Brandt[11] veränderten Rechenprogramms, welches ursprünglich von Dostrovski, Fraenkel und Rabinowitz[8] entwickelt wurde. Es erlaubt die Berechnung

von Hochenergiekernreaktionen nach dem Serber-Modell (siehe Einleitung dieser Arbeit). Die berechneten Werte von Stark sind aber weiterhin etwa eine Größenordnung zu klein im Vergleich zu den Experimenten. Das gleiche Ergebnis wurde schon 1960 von Pate und Poskanzer gefunden. Damit zeigt sich, daß die Änderungen von Stark und Brandt am Rechenprogramm physikalisch unerheblich sind. Eine nähere Untersuchung der Ursachen dieser Diskrepanz zwischen Experiment und Theorie liegt außerhalb des Rahmens dieser Arbeit.

Nuklid	Wirkungsquerschnitte in mbarn			Anzahl der
	diese Arbeit	Pate und Poskanzer[17]	Stark[20]	berücksichtigten
	experimentell	experimentell	berechnet	Messungen
^{221}Ra	9.2 ± 0.9		0.66	4
^{222}Ra	9.8 ± 1.1		0.93	3
^{224}Ra	5.9 ± 0.5		5.3	5
^{222}Ac	6.6 ± 2.8			1
^{222m}Ac	7.5 ± 1.7			3
^{223}Ac	14.9 ± 2.0			4
^{225}Ac	5.3 ± 0.5	5.0 ± 0.9	1.2	5
^{226}Ac	5.1 ± 0.5	5.5 ± 1.4	0.13	5
^{225}Th	7.9 ± 1.1		1.7	1
^{226}Th	15.5 ± 1.8	14 ± 2	0.93	1
^{227}Th	16.0 ± 1.3	15 ± 3	6.5	1
^{211}Rn	3.3 ± 0.5		5.2	5

Tabelle 14 Experimentelle Wirkungsquerschnitte für die Reaktion ^{232}Th + 600 MeV Protonen. Die Ausbeute für ^{211}Rn ist kumulativ.

Mit dem für das Nuklid ^{211}Rn gefundenen Wert σ = 3,3 mbarn kann versucht werden, die von Hagebø et al.[13] angegebene Radon-Isotopenausbeutekurve zu normieren. In Ref. 13 werden die relativen Wirkungsquerschnitte für die Bildung der Rn-Isotope aus Thorium bei 600 MeV angegeben. Durch die Bestimmung des absoluten Wirkungsquerschnittes für ^{211}Rn lassen sich die absoluten Wirkungsquerschnitte der anderen Isotope ermitteln. Ein weiteres Radonisotop konnte bei den hier beschriebenen Experimenten nicht untersucht werden. In Abb. 52 ist die Massenausbeutekurve des Radons dargestellt.

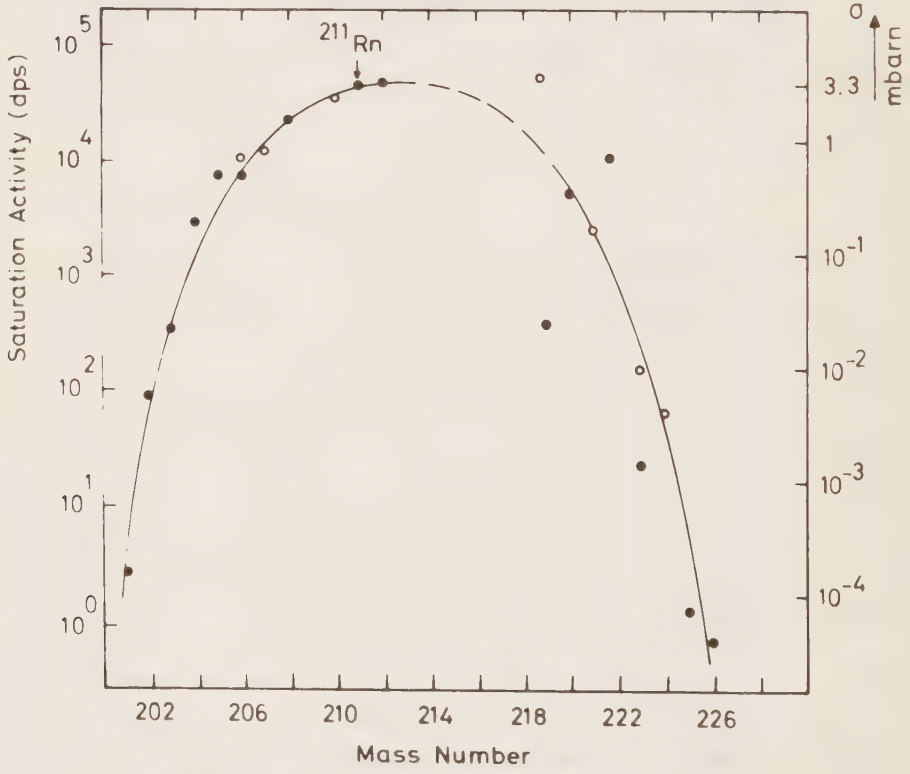


Abb. 52 Massenausbeutekurve des Radons für die Reaktion ^{232}Th + 600 MeV Protonen nach Hagebø et al[13]. Auf der rechten Seite ist die Normierung aufgetragen.

5. Zusammenfassung

Die Theorie der Hochenergie-Kernreaktionen (Bereich $100 \leq E \leq 1000$ MeV) ist bisher noch nicht völlig geklärt. Zur Überprüfung der entwickelten Kernreaktionsmodelle ist die Kenntnis der Wirkungsquerschnitte der auftretenden Reaktionen wichtig. Speziell für Alpha-Strahlung emittierende Nuklide existieren bisher nur die Messungen von Pate und Poskanzer[17]. Das kürzestlebige Nuklid, das von diesen Autoren untersucht wurde, ist das ^{225}Th mit 8 min Halbwertzeit.

In dieser Arbeit ist eine Methode entwickelt worden, die es erlaubt, ohne chemische Trennungen Alpha-Strahlung emittierende Nuklide mit einer Halbwertzeit $T_{1/2} \geq 4$ sec ON-LINE zu untersuchen. Dazu ist eine mechanische Bestrahlungseinrichtung konstruiert worden, mit der das bestrahlte Target innerhalb von 4 sec vor den Detektor zur Analyse der erzeugten Strahlung transportiert werden kann.

Ein für den benutzten Vielkanalanalysator speziell entwickeltes Programm erlaubt die gleichzeitige Registrierung der Energie und des Zeitpunktes des Zerfalls eines Nuklids, dh. jedes Ereignis wird durch diese zwei Größen charakterisiert. Diese Methode ist vielseitiger als das üblicherweise benutzte Multi-Spectrum-Scaling. Die bei der ausführlich untersuchten Reaktion ^{232}Th + 600 MeV Protonen erzeugten Nuklide sind durch ihre Alpha-Energie und ihre Halbwertzeit nahezu vollständig identifiziert worden. Gefunden wurde dabei ein bisher unbekanntes Isomer des ^{222}Ac, welches mit einer Halbwertzeit von $T_{1/2} = 62 \pm 4$ sec zerfällt und eine Energie von etwa 6.75 MeV besitzt.

Es konnten die Wirkungsquerschnitte von 12 Nukliden bestimmt werden. Der Vergleich einiger dieser Werte mit den Ergebnissen von Pate und Poskanzer[17] ergibt gute Übereinstimmung. Weniger gut ist dagegen die Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen, die von Stark[20] auf der Grundlage des Monte-Carlo-Evaporationsprogramms nach dem Ser-

ber-Modell ausgeführt wurden.

Die Isotopenausbeuteverteilung des Radons in der Reaktion ^{232}Th + 600 MeV Protonen konnte durch Ermittlung des Absolutwertes des Wirkungsquerschnitts für ein Radonisotop, nämlich das ^{211}Rn , normiert werden.

Die Untersuchung einiger anderer Targetnuklide konnte aus Zeit- und Kostengründen nicht weitergeführt werden.

6. Danksagungen

Herrn Prof. Dr. R. Brandt, unter dessen Leitung diese Arbeit ausgeführt wurde, möchte ich danken für seine Unterstützung und Anregungen, mitunter auch Ermutigung bei überraschenden Problemen.

Herrn Prof. Dr. K. Starke danke ich für die verständnisvolle Freistellung von anderen Aufgaben.

Besonderer Dank gebührt Herrn Dr. A. Kjelberg von der CERN-Nuclear-Chemistry-Group und vielen seiner Mitarbeiter für die Unterstützung bei den Bestrahlungen am extrahierten Protonenstrahl des CERN-SC.

Für ihre bereitwillige und tatkräftige Hilfe bei den Ausführungen der Messungen sei den Herren Dr. D. M. Montgomery , Dr. A. H. Boos, G. Stark und P. Vater gedankt. Herrn W. Westmeier danke ich für die Unterstützung bei der Auswertung der Meßergebnisse an der TR-4 Rechenanlage in Marburg.

Der Adolf-Todt-Stiftung , Wiesbaden, und dem Bundesministerium für Forschung und Technologie danke ich für Gewährung eines Stipendiums bzw. für die finanzielle Förderung dieser Arbeit.

7. Literaturverzeichnis

1) K. H. Lieser , Einführung in die Kernchemie , Verlag Chemie 1969 260
2) N. T. Porile , in Nuclear Chemistry 1 , Academic Press , New York und London , Herausgeber L. Yaffe (1968) , 58
3) J. Hudis , in Nuclear Chemistry 1 , Academic Press , New York und London , Herausgeber L. Yaffe (1968) , 169
4) B. B. Cunningham , H. H. Hopkins , M. Lindner , D. R. Miller , P. R. O'Connor , I. Perlman , G. T. Seaborg , R. C. Thompson , Phys. Rev. 72 , (1947) , 739
5) J. M. Miller , J. Hudis Ann. Rev. Nucl. Sci. 9 , (1959) , 159
6) N. Metropolis , R. Bivins , M. Storm , A. Turkevich , J. M. Miller , G. Friedlander , Phys. Rev. 110 , (1958) , 158
7) N. Metropolis , R. Bivins , M. Storm , J. M. Miller , G. Friedlander, A. Turkevich , Phys. Rev. 110 , (1958) , 204
8) I. Dostrovsky , Z. Fraenkel , P. Rabinowitz , Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy , Genf , 15 , (1958) , 301
9) R. L. Hahn , H. W. Bertini , Phys. Rev. 6 , (1972) , 660
10) G. Rudstam , Zeitschrift für Naturforschung 21 a , (1966) , 1027
11) G. Stark , R. Brandt wird publiziert
12) P. Patzelt in The ISOLDE Isotope Separator ON - LINE Facility at CERN , Herausgeber A. Kjelberg , G. Rudstam , CERN 70 - 3 , (1970) , 83
13) E. Hagebø , A. Kjelberg , P. Patzelt , G. Rudstam , S. Sundell in The ISOLDE Isotope Separator ON - LINE Facility at CERN , Herausgeber A. Kjelberg , G. Rudstam , CERN 70 - 3 , (1970), 95
14) R. Esterlund , P. Patzelt , R. Brandt , G. Stark , D. Molzahn wird publiziert
15) U. Trabitzsch , K. Bächmann , Radiochimica Acta 16 , (1971), 15
16) R. Brandt , Habilitationsschrift Philipps - Universität Marburg 1968, unveröffentlicht

17) B. D. Pate , A. M. Poskanzer , Phys. Rev. 123 , (1961) , 647

18) R. L. Hahn , M. F. Roche , K. S. Toth , Nucl. Phys. A 113 , (1968), 206

19) R. L. Hahn , M. F. Roche , K. S. Toth , Bull. Amer. Phys. Soc. 14 , (1969) , 588

20) G. Stark , Dissertation , wird fertiggestellt

21) A. H. Boos , R. Brandt , D. Molzahn , D. Montgomery , CERN 70 - 30, (1970) , 575

22) A. H. Boos , R. Brandt , D. Molzahn , D. Montgomery , Journal Inorg. Nucl. Chem. 34 , (1972) , 3309

23) A. Kjelberg , G. Rudstam , The ISOLDE - Isotope Separator ON - LINE Facility at CERN , CERN 70 - 3 , (1970)

24) L. Herforth , H. Koch , Radiophysikalisches und radiochemisches Grundpraktikum , Deutscher Verlag der Wissenschaften , Berlin (1959)

25) D. Engelkemeir , Nucl . Inst. Meth. 48 , (1967) , 335

26) Baranov , Koulakov , Zelenkov , Chatinski , Nucl. Phys. 43 , (1963), 547

27) D. F. Torgerson , N. S. Oakey , R. D. MacFarlane , Nucl. Phys. A 178 , (1971) , 69

28) R. E. Eppley , J. D. Bowman , E. K. Hyde , Nuclear Chemistry Annual Report (1971) , Lawrence Berkeley Laboratory LBL - 666 , (1972) , 18

29) J. B. Cumming , Ann. Rev. Nucl. Sci. 13 , (1963) , 261

30) Nuklidkarte , Herausgeber Der Bundesminister für wissenschaftliche Forschung , Bonn , 3. Auflage (1968) , Bearbeiter W. Seelmann - Eggebert , G. Pfennig , H. Münzel

31) R. Brandt , F. Carbonara , E. Cieslak , H. Piekarz , J. Piekarz , J. Zakrzewski , Rev. Phys. Appl. 7 , (1972) , 243

32) Table of Isotopes , C. M. Lederer , J. M. Hollander , I. Perlman , John Wiley and Sons , Inc. , New York , London , Sydney , 6. Edition, (1968)

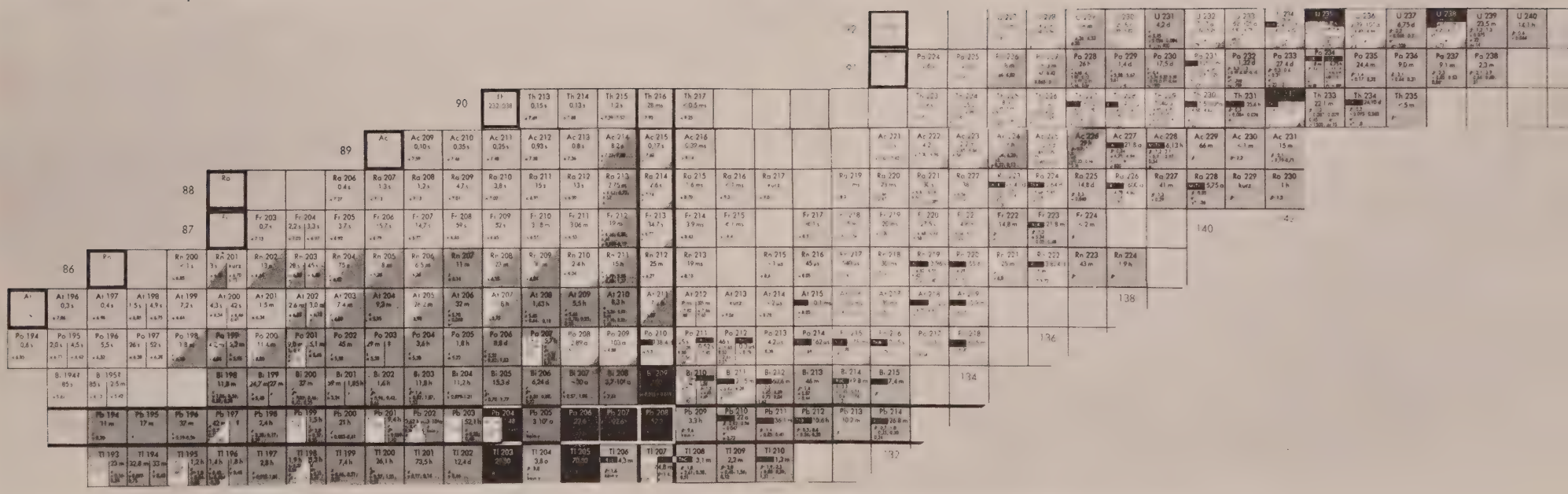
33) J. B. Cumming , Application of Computers to Nuclear - and Radio-

chemistry , Herausgeber G. D. O'Kelley (Office of Technical Services , Washington D. C. 1963) , NAS - NS 3107

34) K. Eskola , Phys. Rev. C 5 , (1972) , 942

35) A. Ghiorso , M. Nurmia , K. Eskola , P. Eskola , Phys. Letters 32 B (1970) , 95

36) H. Jungclas , private Mitteilung



Lebenslauf

Am 5. 4. 1935 wurde ich in Burgstädt/Sachsen als Sohn des Autoschlossers Paul Molzahn und seiner Ehefrau Lotte, geb. Ulrich geboren.

Von 1938 bis 1945 lebten wir in Stettin bzw. Neustettin, der Heimat meiner Eltern. Nach einem kurzen Aufenthalt in Burgstädt/S. von Januar 1945 bis September 1946 zogen wir nach Kassel. Dort besuchte ich das Realgymnasium Wesertor und legte im März 1955 an dieser Schule die Reifeprüfung ab.

Im Sommersemester 1955 begann ich mit dem Studium der Physik an der Philipps-Universität Marburg. Im Frühjahr 1958 bestand ich die Diplom-Vorprüfung, im Dezember 1961 die Diplom-Hauptprüfung. Meine Diplomarbeit " Bestimmung der absoluten Fluoreszenzquantenausbeute von Cyaninen " fertigte ich unter Leitung von Herrn Prof. Dr. H. Kuhn am Physikalisch-Chemischen - Institut der Philipps-Universität Marburg an.

Seit Januar 1962 bin ich als wissenschaftlicher Angestellter im Institut für Kernchemie, jetzt Fachgebiet Kernchemie im FB 14 , beschäftigt.

Seit 1965 bin ich verheiratet.

Die vorliegende Dissertation begann ich im Jahre 1970 unter Leitung von Prof. Dr. R. Brandt am Institut für Kernchemie. Die Experimente führte ich in den Jahren 1970 bis 1973 am Synchrozyklotron des CERN in Genf aus.